

# Reaktive Molekularstrahlepitaxie und Charakterisierung von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen auf SiC(0001)

## D I S S E R T A T I O N

zur Erlangung des akademischen Grades  
doctor rerum naturalium  
(Dr. rer. nat.)  
im Fach Physik

eingereicht an der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I  
Humboldt-Universität zu Berlin

von  
Herrn Dipl.-Phys. Andreas Thamm  
geboren am 1. Mai 1973 in Berlin

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:  
Prof. Dr. J. Mlynek

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:  
Prof. Dr. B. Ronacher

Gutachter:

1. Prof. Dr. K. H. Ploog
2. Prof. Dr. W. T. Masselink
3. Prof. Dr. J. H. Wolter

## Zusammenfassung

Thema dieser Arbeit ist die Synthese von hexagonalen GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie (MBE) auf SiC(0001)-Substraten. Der Einfluß der Wachstumsbedingungen auf die strukturellen, morphologischen, optischen und elektrischen Eigenschaften der Proben wird untersucht.

Die reaktive MBE von Gruppe-III-Nitriden nutzt die katalytische Dekomposition von  $\text{NH}_3$  als Stickstoff-Precursor. Im Vergleich zur plasma-unterstützten MBE und metall-organischen Gasphasenepitaxie (MOCVD) ist dieses Abscheideverfahren eine noch wenig etablierte Methode, um kristalline (Al,Ga)N-basierende Heterostrukturen herzustellen. Es wird eine Einführung in das Verfahren und die Oberflächenchemie der reaktiven MBE gegeben.

Die Synthese von (Al,Ga)N-Pufferschichten auf SiC(0001) wird diskutiert. Eine Prozedur zur Präparation der SiC-Substrate wird vorgestellt. Eine Methode zur *in situ*-Kontrolle der Wachstumsparameter wird erarbeitet, die auf der Beugung von hochenergetischen Elektronen (RHEED) beruht und ein reproduzierbares (Al,Ga)N-Wachstum ermöglicht. Die Pufferschichten haben atomar glatte Oberflächen, die sich für eine weitere Abscheidung von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen eignen. Es werden die strukturellen und optischen Eigenschaften solcher Strukturen studiert und mit Proben verglichen, die mittels plasma-unterstützter MBE und MOCVD hergestellt werden.

Im Vergleich zu den übrigen III-V-Halbleitern zeichnen sich die hexagonalen Nitride besonders durch die Größe ihrer elektrischen Polarisationsfelder aus. GaN/(Al,Ga)N-Multiquantenwell-Strukturen (MQWs) mit unterschiedlichen Well-Dicken werden auf GaN- und (Al,Ga)N-Pufferschichten gewachsen. Es werden die Auswirkungen der spontanen Polarisation und Piezopolarisation auf die optischen Eigenschaften der MQWs studiert. Im speziellen wird – experimentell und theoretisch – gezeigt, daß die polarisationsbedingten elektrischen Felder in GaN/(Al,Ga)N-MQWs nicht durch hohe Dichten von freien Ladungsträgern abgeschirmt werden können. Ferner wird der Einfluß der GaN/(Al,Ga)N-Grenzflächenmorphologie auf die optischen Eigenschaften studiert.

Das Wachstum von (Al,Ga)N/GaN-Heterostruktur-Feldeffekt-Transistoren (HFETs) auf semi-isolierenden (Al,Ga)N-Puffern wird untersucht. Diese Heterostrukturen zeichnen sich durch eine geringe Dichte an Fadenversetzungen ( $1\text{--}2 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ) und durch das Fehlen jeglicher Paralleleitfähigkeit aus. Für diese Strukturen, die Beweglichkeiten von bis zu  $750 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  bei Raumtemperatur zeigen, werden Simulationen der temperaturabhängigen Beweglichkeiten unter Beachtung aller wichtigen Streumechanismen durchgeführt. In Übereinstimmung mit der Sekundärionenspektrometrie an diesen Proben wird belegt, daß die Transistoreigenschaften dominant durch tiefe Störstellen – sehr wahrscheinlich As – begrenzt werden.

Es wird die Synthese von spannungskompensierten GaN/(Al,Ga)N-Bragg-Reflektoren mit Reflektivitäten von über 90% im blauen Spektralbereich vorgestellt. Die experimentelle Realisierung basiert auf der exakten Bestimmung der individuellen Schichtdicken durch die Simulation der gemessenen Röntgenbeugungsprofile und Reflektivitätsspektren. Die mittels Laserstreuung abgeschätzten Reflektivitätsverluste können durch  $\text{NH}_3$ -reiche Synthesbedingungen reduziert werden.

**Schlagwörter:** Galliumnitrid, (Al,Ga)N, (Al,Ga)N-Heterostrukturen, Quantengraben, Polarisationsfelder, Molekularstrahlepitaxie, Reaktive MBE, Feldeffekt-Transistor, Bragg-Reflektor

## Abstract

In this thesis, we investigate the synthesis of wurtzite (Al,Ga)N heterostructures on SiC(0001) by reactive molecular beam epitaxy (MBE). We examine the impact of growth conditions on the structural, morphological, optical and electrical properties of the films.

MBE of group-III nitrides is almost entirely based on the use of an  $N_2$  plasma discharge for providing reactive N. However, an alternative and attractive candidate for producing N radicals is  $NH_3$ , which decomposes on the growth front by a catalytic reaction even at comparatively low temperatures. The basic growth technique and surface chemistry of reactive MBE is introduced.

The deposition of (Al,Ga)N buffer layers on SiC(0001) substrates is discussed. An *ex-situ* cleaning procedure for the SiC substrates is presented. An *in-situ* method for the reproducible growth of these buffers layers is developed based on reflection high-energy electron diffraction (RHEED). The layers have atomically smooth surfaces well suited for the growth of GaN/(Al,Ga)N heterostructures. The structural and optical properties of these buffers are compared to such layers grown by plasma-assisted MBE and metal organic vapor phase deposition (MOCVD), respectively.

Compared to other III-V semiconductors hexagonal nitrides exhibit huge electrical polarization fields. GaN/(Al,Ga)N multiple quantum wells (MQWs) with different well thicknesses are deposited on GaN and (Al,Ga)N buffer layers, respectively. It is demonstrated that the electric field in the quantum wells (QWs) leads to a quantum-confined Stark shift of the QW emission, which thus can fall well below the bulk GaN band-gap energy. In the opposite, it is proved that the strain state of the QWs alone has little impact on the electric fields in MQWs. The optical properties of these heterostructures are studied by stationary and time-resolved photoluminescence and compared with the results of self-consistent Schrödinger-Poisson calculations. It is shown that the recombination dynamics in heavily doped MQWs ( $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) is still controlled by residual fields, contrary to the common assumption that flat-band conditions are achieved at this doping level. Furthermore, the influence of the interface roughness on the QW emission widths is analyzed.

The growth of (Al,Ga)N/GaN heterostructure field effect transistors (HFETs) on semi-insulating (Al,Ga)N buffers is studied. Temperature dependent Hall measurements show a mobility of up to  $750 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  and  $1400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  at 300 K and 77 K, respectively. Transmission electron microscopy reveals the (Al,Ga)N/GaN interface to be abrupt and the dislocation density to be too low to limit the HFET mobility. However, secondary ion mass spectroscopy detects a significant concentration of As in the channel region. Indeed, an excellent fit to the temperature dependence of the mobility is obtained by including scattering with As.

The synthesis and analysis of highly reflective and conductive GaN/(Al,Ga)N Bragg reflectors is examined. The realization of these Bragg mirrors is based on the exact determination of the structural parameters by simulating x-ray diffraction profiles and corresponding reflectivity spectra. To prevent cracking from these thick stacks, a concept of strain-balanced multilayer structure is employed. It is demonstrated that the difference between the theoretical and the measured maximum reflectivity can be minimized by growing the Bragg mirrors under  $NH_3$  stable growth conditions.

**Keywords:** gallium nitride, (Al,Ga)N, (Al,Ga)N heterostructures, quantum wells, polarization fields, molecular beam epitaxy, reactive MBE, field effect transistor, Bragg reflector

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht:

A. THAMM, O. BRANDT, Y. TAKEMURA, A. TRAMPERT, AND K. H. PLOOG, *Reactive molecular beam epitaxy of GaN layers directly on 6H-SiC(0001)*, Appl. Phys. Lett. **75**, 944 (1999).

O. BRANDT, R. MURALIDHARAN, P. WALTEREIT, A. THAMM, A. TRAMPERT, H. VON KIEDROWSKI, AND K. H. PLOOG, *Critical issues for the growth of high quality (Al,Ga)N/GaN and GaN/(In,Ga)N heterostructures on SiC(0001) by molecular beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **75**, 4019 (1999).

A. THAMM, O. BRANDT, A. TRAMPERT, J. RINGLING, K. H. PLOOG, O. MAYROCK, H.-J. WÜNSCHE, AND F. HENNEBERGER, *Optical properties of heavily doped GaN/(Al,Ga)N multiple quantum wells grown on 6H-SiC(0001) by reactive molecular-beam epitaxy*, Phys. Rev. B **61**, 16025 (2000).

A. THAMM, O. BRANDT, A. TRAMPERT, AND K. H. PLOOG, *Morphology of GaN surfaces and GaN/(Al,Ga)N interfaces grown on 6H-SiC(0001) by reactive molecular-beam epitaxy*, Proc. Third International Symposium on Blue Laser and Light Emitting Diodes (ISBLLED), Zeuthen (Germany) 2000, Phys. Stat. Sol. **180**, 73 (2000).

A. THAMM, O. BRANDT, A. TRAMPERT, U. JAHN, AND K. H. PLOOG, *GaN/(Al,Ga)N multiple quantum wells grown on 6H-SiC(0001) by reactive molecular-beam epitaxy*, 26<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors, Berlin (Germany) 1999, Inst. Phys. Conf. Ser. No **166** (IOP, Bristol, 2000), p. 461.

K. H. PLOOG, O. BRANDT, R. MURALIDHARAN, A. THAMM, AND P. WALTEREIT, *Growth of high-quality (Al,Ga)N and (Ga,In)N heterostructures on SiC(0001) by both plasma-assisted and reactive molecular beam epitaxy*, 27th Conference on the Physics and Chemistry of Semiconductor Interfaces, Salt Lake City (USA) 2000, J. Vac. Sci. Technol. B **18**, 2290 (2000).

O. BRANDT, R. MURALIDHARAN, A. THAMM, P. WALTEREIT, AND K. H. PLOOG, *Key issues for the growth of high-quality (Al,Ga)N/GaN and GaN/(In,Ga)N heterostructures by molecular beam epitaxy*, Proc. 10th International Conference on Solid Films and Surfaces, Princeton (USA) 2000. Appl. Surf. Sci. (to be published).

U. BEHN, A. THAMM, O. BRANDT, AND H. T. GRAHN, *Temperature dependence of the photorefectance lineshape for GaN films grown by molecular beam epitaxy*, Phys. Stat. Sol. **180**, 381 (2000).

U. BEHN, A. THAMM, O. BRANDT, AND H. T. GRAHN, *Unpinned behavior of the surface Fermi level of GaN detected by photorefectance spectroscopy* Appl. Phys. Lett. **87**, 4315 (2000).

A. THAMM, O. BRANDT, Y. TAKEMURA, H.-P. SCHÖNHERR, A. TRAMPERT, M. REICHE, AND K. H. PLOOG, *GaN/(Al,Ga)N heterostructures grown on 6H-SiC(0001) by reactive MBE*,  
Proc. X<sup>th</sup> Euro MBE Workshop, Les Arcs (France) 1999.

O. BRANDT, R. MURALIDHARAN, A. THAMM AND P. WALTEREIT, AND K. H. PLOOG, *Essential strategies for the growth of high-quality (Al,Ga)N/GaN and GaN/(In,Ga)N heterostructures on SiC(0001) by molecular beam epitaxy*,  
Proc. 10<sup>th</sup> International Workshop on the Physics of Semiconductor Devices, edited by V. Kumar and S. K. Agarwal (Allied Publishers Ltd., New Delhi, 2000), p. 1495.

K. H. PLOOG, O. BRANDT, P. WALTEREIT, A. THAMM, AND R. MURALIDHARAN, *N<sub>2</sub> plasma discharge versus NH<sub>3</sub> cracking in (Al,Ga,In)N MBE growth*,  
Proc. Photonics West Conference, San Jose (USA) 2000.

H. T. GRAHN, A. THAMM, P. WALTEREIT, O. BRANDT, AND K. H. PLOOG, *Influence of internal electric fields on the carrier dynamics in GaN/(Al,Ga)N multiple quantum wells with different orientation and strain state*,  
International Workshop on Nitride Semiconductors, Nagoya (Japan) 2000, Jpn. J. Appl. Phys. (to be published).

A. THAMM, O. BRANDT, AND K. H. PLOOG, *Reaktive MBE von (Al,Ga)N/GaN Multi-quantenwells*,  
Verhandl. DPG (VI) **35**, 534 (2000).

Ein Teil der Abbildungen wurde aus den Veröffentlichungen übernommen. Alle Abbildungen wurden daher einheitlich englisch beschriftet.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>6</b>
<b>2</b>	<b>Molekularstrahlepitaxie</b>	<b>8</b>
2.1	Allgemeine Überlegungen zum Wachstumsprozeß . . . . .	9
2.2	Reaktive MBE . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Synthese von GaN und (Al,Ga)N auf SiC(0001)</b>	<b>18</b>
3.1	Substratwahl und -präparation . . . . .	18
3.2	Nukleation von GaN und (Al,Ga)N . . . . .	21
3.3	Wachstum von GaN und (Al,Ga)N . . . . .	23
3.3.1	Substrattemperatur . . . . .	23
3.3.2	V/III-Verhältnis . . . . .	25
<b>4</b>	<b>Charakterisierung der GaN-Pufferschichten</b>	<b>28</b>
4.1	Strukturelle Eigenschaften . . . . .	28
4.2	Optische Eigenschaften . . . . .	33
4.3	Elektrische Eigenschaften . . . . .	37
<b>5</b>	<b>GaN/(Al,Ga)N Multiquantenwell-Strukturen</b>	<b>39</b>
5.1	Elektrostatische Felder in hexagonalen Nitriden . . . . .	39
5.2	Abschirmung der internen elektrostatischen Felder . . . . .	41
5.3	Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen . . . . .	48
<b>6</b>	<b>Heterostruktur-Feldeffekt-Transistoren</b>	<b>53</b>
6.1	Einführung . . . . .	53
6.2	Polarisationsbedingte zweidimensionale Elektronengase . . . . .	53
6.3	Herstellung und Charakterisierung von HFETs . . . . .	57
6.4	Simulation der HFET-Beweglichkeiten . . . . .	63
<b>7</b>	<b>Bragg-Reflektoren</b>	<b>71</b>
7.1	Einführung . . . . .	71
7.2	Vorbetrachtungen und Schichtdesign . . . . .	72
7.3	Synthese und Eigenschaften . . . . .	75
	<b>Rückblick und Ausblick</b>	<b>82</b>
	<b>Anhang</b>	<b>84</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>86</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>96</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>98</b>
	<b>Selbständigkeitserklärung</b>	<b>99</b>

# 1 Einleitung

Der Verbindungshalbleiter GaN hat eine direkte Bandlücke von 3.4 eV, die durch Legierung mit In oder Al einen Energiebereich von 1.9 eV bis 6.2 eV abdeckt [1]. Diese Eigenschaft macht die Gruppe-III-Nitride zum idealen Materialsystem für die Erzeugung von ultraviolett (UV) bis rotem Licht [2]. GaN-basierenden Strukturen werden fast ausschließlich epitaktisch auf Fremdsubstraten abgeschieden [3], da die Herstellung von GaN-Substraten bis heute problematisch ist [4].

In der letzten Dekade eröffnete der technologische Durchbruch in der Herstellung hochqualitativer Nitridschichten<sup>1</sup> [5] die rasante Entwicklung von Bauelementen. Die industrielle Produktion von im sichtbaren Spektralbereich emittierenden Leuchtdioden (LED) für Vollfarbendisplays und Beleuchtungszwecke [6] als auch Laserdioden (LD) [7] für digitale Schreib-Lese-Anwendungen [8] schafft gegenwärtig einen großen kommerziellen Markt. Anwendungen wie z. B. Bragg-Reflektoren [9], UV-Detektoren [10] und SAW-Bauelemente [11] befinden sich noch im Entwicklungsstadium. Die dichten Elektronengase in (Al,Ga)N/GaN-Heterostrukturen werden als Basis für die Herstellung von Hochfrequenz-, Hochleistungs- und Hochtemperatur-Feldeffekttransistoren benutzt [12].

Voraussetzung für die Herstellung dieser Strukturen ist zunächst das Verständnis der grundlegenden Wachstumsmechanismen von (Al,Ga,In)N-Schichten, um die Kriterien hoher kristalliner, elektrischer und optischer Qualität erfüllen. In der Anfangsphase der Nitridepitaxie (bis zu Beginn der neunziger Jahre) wurden hochqualitative Schichten nur mit metallorganischer Gasphasenepitaxie (*MOCVD – metal organic vapor phase epitaxy*) realisiert [13]. Heutzutage können auch mittels Molekularstrahlepitaxie (*MBE – molecular beam epitaxy*) [14] vergleichbare Schichtqualitäten hergestellt werden [15]. Dieser Erfolg ist das Resultat detaillierter *in situ*-Analysen des Wachstumsprozesses mittels Reflexions-Elektronenbeugung, die eine gezielte Optimierung der Epitaxieschichten ermöglichen [16, 17, 18].

Thema der vorliegenden Arbeit ist die heteroepitaktische Synthese von GaN-Schichten und GaN/(Al,Ga)N-Mehrschichtstrukturen auf SiC-Substraten. Die Herstellung dieser Strukturen erfolgt mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie (RMBE), die als Stickstoff-Precursor die katalytische Dekomposition von  $\text{NH}_3$  nutzt. Obwohl dieses Herstellungsverfahren viele Vorteile gegenüber der MOCVD und der plasma-unterstützten MBE (PAMBE) von Gruppe-III-Nitriden bietet, wurde die RMBE von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen auf SiC(0001) bisher nicht systematisch untersucht. Deshalb soll zunächst das epitaktische Wachstum von GaN-Pufferschichten und dessen *in situ*-Kontrolle studiert werden. In Zusammenhang damit sollen die strukturellen, optischen und elektrischen Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Strukturen untersucht werden. Der zweite Schwerpunkt der Arbeit ist die Herstellung und Charakterisierung von bauelement-relevanten (Al,Ga)N/GaN-Heterostrukturen.

Diese Zielsetzung deutet die weitere Gliederung der Arbeit an. In Kapitel 2 werden zunächst eine kurze Einführung in die Prinzipien der Heteroepitaxie gegeben und die wichtigsten Substrate für das Nitrid-Wachstum vorgestellt. Anschließend wird das RMBE-Verfahren anhand des Aufbaus, der Wachstumskinetik des  $\text{NH}_3$ -Precursors

---

<sup>1</sup>Falls nicht näher erläutert, wird im folgenden die Bezeichnung 'Nitrid' ausschließlich für die Gruppe-III-Nitride GaN, AlN, InN und deren Legierungen genutzt.

und der chemischen Oberflächenreaktionen erläutert. In Kapitel 3 werden die Ergebnisse zur SiC-Substratpräparation und zum Wachstum von GaN- und (Al,Ga)N-Pufferschichten zusammengefaßt und diskutiert. Kapitel 4 widmet sich der Charakterisierung dieser Pufferschichten. Hierbei werden die Eigenschaften der RMBE-Schichten mit denen von MOCVD- bzw. PAMBE-Schichten verglichen. In Kapitel 5 werden die Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Multiquantenwell-Strukturen (MQWs) diskutiert. Im speziellen wird – experimentell und theoretisch – gezeigt, daß die elektrostatischen Felder in solchen Strukturen nicht durch hohe Dichten an freien Ladungsträgern abgeschirmt werden können. Daran anschließend wird anhand von GaN/(Al,Ga)N-MQWs der Einfluß der Grenzflächenmorphologie auf die optischen Eigenschaften diskutiert. In Kapitel 6 werden nach einer kurzen Einführung in die polarisationsbedingten zweidimensionalen Elektronengase (2DEG) die Herstellung und die Eigenschaften von Heterostruktur-Feldeffekt-Transistor (HFET)-Strukturen studiert. Hierfür werden die HFET-Beweglichkeiten unter Beachtung der wichtigsten Streumechanismen simuliert. Schließlich wird in Kapitel 7 die Synthese von GaN/(Al,Ga)N-Bragg-Reflektoren dargestellt. Die strukturelle Analyse dieser Bragg-Spiegel erlaubt in Verbindung mit Reflektivitätssimulationen die exakte Bestimmung und Optimierung der Herstellungsparameter, die in Reflektivitäten von über 90% resultieren. Die Arbeit schließt mit einem Rückblick, der die wichtigsten Ergebnisse zusammenfaßt, und weist auf künftige Fragestellungen, Arbeitsthemen und Probleme hin.

Aufgrund der Vielfalt der verwendeten Untersuchungsmethoden wurden diese nicht in einem gesonderten Kapitel, sondern vor der Diskussion der betreffenden Experimente beschrieben. Um die Argumentationsführung transparenter zu gestalten, werden auch die theoretischen Grundlagen am jeweilig relevanten Objekt diskutiert.



## 2 Molekularstrahlepitaxie

In diesem Kapitel wird zuerst die historische Entwicklung der unterschiedlichen Epitaxieverfahren zur Herstellung von Gruppe-III-Nitriden vorgestellt, bevor der erste Abschnitt die allgemeinen Aspekte des kristallinen GaN-Wachstums kurz skizziert. Schließlich wird das Verfahren der reaktiven MBE ausführlich beschrieben und deren Vor- und Nachteile gegenüber etablierten Synthesetechniken diskutiert. Alle hier vorgestellten Ergebnisse basieren auf GaN-basierenden Schichten, die mit reaktiver MBE hergestellt wurden.

In der modernen Halbleiterphysik wie auch in der Bauelementtechnologie spielen in immer stärkeren Maße dünne kristalline Schichten eine wichtige Rolle. Insbesondere Mehrschichtstrukturen sind von Interesse, um sowohl Halbleiter-Leuchtdioden und -Laser als auch schnelle Transistoren herzustellen [7, 2, 19, 20, 21, 22]. Zur Erzeugung solcher Halbleiterschichtstrukturen werden Epitaxieverfahren verwendet, die eine präzise Kontrolle der individuellen Schichtdicken ermöglichen.

Bereits vor 100 Jahren führte Barker die ersten Epitaxieexperimente durch, als er Alkali-Halide aufeinander abschied. Royer stellte 1928 erstmals Regeln für das Auftreten von Epitaxie auf und prägte dessen Namen (*griechisch: epi – auf, taxis – anordnen*). Das Interesse an der Epitaxie stieg durch die Entdeckung der Elektronenbeugung (1927) stark an, da erstmals die Kristallstruktur dünner Schichten untersucht werden konnte. Die Entwicklung der Vakuumtechnologie ermöglichte Sloat und Menzies 1931 die ersten Aufdampfexperimente im Hochvakuum – die Ära der Gasphasenepitaxie hatte begonnen [23]. Anfang der sechziger Jahre wurden derartige Versuche im Ultrahochvakuum durchgeführt. In gasphasen-epitaktischen Prozessen agiert eine Substratoberfläche als Keimkristall. Die epitaktische Schicht kann oft bei deutlich geringeren Temperaturen als dessen Schmelztemperatur aufgedampft werden (typischerweise 30–50% niedriger).

Neben anderen Epitaxietechniken wie der Flüssigphasenepitaxie (*LPE – liquid phase epitaxy*) und der metallorganischen Gasphasenepitaxie hat sich die Molekularstrahlepitaxie als physikalisches Abscheideverfahren zur Herstellung dünner einkristalliner Schichten hoher Qualität am weitesten entwickelt. Mittels dieser Technik und einiger Modifikationen, wie der Atomic-Layer-Epitaxy (ALE), ist es heutzutage möglich, Schichten mit einer Dicke von Bruchteilen einer Atomlage kontrolliert und reproduzierbar auf einem Substrat epitaktisch abzuscheiden und diesen Prozeß *in situ* zu kontrollieren, so daß maßgeschneiderte Bauelemente mit nahezu beliebiger Schichtfolge realisiert werden können. Die exakt einstellbaren Materialprofile auf Nanometerskalen erlauben die gezielte Veränderung der elektronischen Bandstruktur. Diese Techniken werden unter dem Begriff 'Band-gap Engineering' zusammengefaßt.<sup>1</sup>

Die Synthese von Gruppe-III-Nitriden geht auf Johnson *et al.* zurück, die 1932 zum ersten Mal die Umwandlung von metallischem Ga in einem NH<sub>3</sub>-Fluß zu mikrokristallinem GaN beschrieben [24]. 1969 etablierten Maruska und Tietjen die CVD-Technik

---

<sup>1</sup>Für ihre bahnbrechenden Arbeiten erhielten Herbert Krömer [theoretische Beschreibung des Bipolar-Transistors (1957) und des Doppel-Heterostruktur-Lasers (1963)], Zhores I. Alferov [Herstellung des ersten cw-Halbleiter-Lasers (1970)] und Jack S. Kilby [Herstellung des ersten integrierten Schaltkreises aus Ge (1958)] im letzten Jahr den Nobelpreis für Physik.

und realisierten erstmals aus GaCl und NH<sub>3</sub> einkristalline GaN-Schichten auf unterschiedlichen Substraten [25]. Gotoh *et al.* nutzten 1981 erstmals die Gasquellen-MBE (*GSMBE – gas source MBE* bzw. *RMBE – reactive MBE*), um GaN aus den Komponenten Ga und NH<sub>3</sub> auf Saphir-Substraten abzuscheiden [26]. Die Hoffnung war, daß die RMBE die Synthese von Gruppe-III-Nitriden bei geringeren Wachstumstemperaturen ermöglicht, um somit die Konzentration von Eigenstörstellen und der damit verbundenen *n*-Leitfähigkeit zu reduzieren und die Ausbildung atomar scharfer Heterogrenzflächen zu gestatten. Yoshida *et al.* konnten 1983 die Eigenschaften der GaN-Schichten durch dünne AlN-Zwischenpuffer deutlich verbessern (Zweischritt-Epitaxie) [27]. Die Restgasverunreinigungen des NH<sub>3</sub>-Precursors verhinderten jedoch bei Gotoh's und Yoshida's Schichten Ladungsträgerkonzentrationen unter 10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>. Eine andere Methode zur N-Aktivierung ist die plasma-unterstützte Aktivierung des N<sub>2</sub>-Moleküls (*PAMBE – plasma-assisted MBE*), die erstmals 1968 von Wauk und Winslow genutzt wurde [28].

## 2.1 Allgemeine Überlegungen zum Wachstumsprozeß

Die Heteroepitaxie bezeichnet die gesetzmäßig orientierte Deposition – auch Abscheidung oder Wachstum genannt – einer kristallinen Schicht auf ein im allgemeinen anderes kristallines Substrat. Dieser Prozeß ist ein dynamisches Phänomen, bei dem sowohl thermodynamische als auch kinetische Aspekte zu berücksichtigen sind [14]. Während die Thermodynamik das Verhalten des physikalischen Systems im Gleichgewicht beschreibt, kontrolliert die Kinetik die Möglichkeit des Systems, sich zum (vom) Gleichgewicht hin (weg) zu bewegen.

Das epitaktische Wachstum kann in drei unterschiedlichen Mechanismen erfolgen. Ist die Bindung der abgeschiedenen Atome untereinander größer als die zur Substratoberfläche, wird die Ausbildung von dreidimensionalen (3D) Inseln unmittelbar auf der Oberfläche bevorzugt (Volmer-Weber-Modus). Dem entgegengesetzt entsteht das lagenweise Wachstum bei vollständiger Benetzung der Substratoberfläche durch das Adsorbat (Frank-van der Merwe-Modus), wenn ihre Bindung zum Substrat größer als zueinander ist. Die notwendige Bedingung zur Benetzung des Substrates ist im thermodynamischen Gleichgewicht durch die Balance der spezifischen Energien des Substrat-Adsorbat-Systems gegeben [29]:

$$\sigma_s \geq \sigma_e + \sigma_i \cos \Theta, \quad (2.1)$$

wobei  $\sigma_s$ ,  $\sigma_e$  und  $\sigma_i$  die freie Energie der Substrat-Oberfläche, der Adsorbat-Oberfläche und der Substrat-Adsorbat-Grenzfläche sowie  $\Theta$  der Kontaktwinkel zwischen Substrat und Adsorbat ist [30]. Die ideale zweidimensionale (2D) Nukleation, d. h.  $\Theta = 0^\circ$ , wird im Fall der Homoepitaxie verwirklicht ( $\sigma_s = \sigma_e$ ,  $\sigma_i = 0$ ) und ist ansonsten nur durch geeignete Kombination der spezifischen freien Energien möglich [31].

Im Falle der Heteroepitaxie wird oft eine Mischung dieser beiden Wachstumsmechanismen beobachtet. Nach der anfänglichen Benetzung des Substrates kann eine Gitterfehlانpassung zwischen den Komponenten einem morphologischen Phasenübergang vom 2D-Wachstum zur Inselbildung induzieren (Stranski-Krastanov-Modus). Die Energiebilanz des Systems wird in diesem Fall von der Verspannungsenergie des Kristalls dominiert, die proportional zur Dicke der Schicht ansteigt.

**Tabelle 2.1:** Eigenschaften der wichtigsten Substratmaterialien für die Nitrid-Epitaxie [19], wobei  $a$  und  $c$  die *in plane*- bzw. *out of plane*-Gitterkonstanten,  $\Delta$  die *in plane*-Gitterfehlانpassung,  $\alpha$  den linearen thermischen Expansionskoeffizienten und  $\lambda$  die thermische Leitfähigkeit bezeichnet. Der Preis bezieht sich auf 2"-Scheiben.

Substrat	Gitterkonstanten (Å)	$\Delta$ (%)	$\alpha$ ( $10^{-6}$ 1/K)	$\lambda$ (W/cm K)	Preis (\$)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001)	$a=4.758$ (2.747) $c=12.99$	+49 (−13.8) <sup>2</sup>	7.5 8.5	0.5	150
Si(111)	$a=5.4301$	+20.4	3.59	1.5	20
SiC(0001)	$a=3.0806$ $c=15.12$	−3.4	4.2 4.68	4.9	>1500
GaN(0001)	$a=3.1876$ $c=5.158$	0	5.59 3.17	1.3	–

Durch die Bildung von 3D-Inseln wird die in der Schicht gespeicherte Verspannungsenergie durch elastische Relaxation minimiert. Diesem Spannungsabbau steht jedoch prinzipiell eine Zunahme an Oberflächenenergie durch Inselbildung entgegen. Zweidimensionales Wachstum läßt sich demnach stabilisieren, wenn die Inselbildung zu einem Anwachsen der Oberflächenenergie um einen Betrag führt, der größer ist als der Gewinn durch die inselbedingte elastische Relaxation. Thermodynamische Betrachtungen wie auch atomistische Monte-Carlo-Simulationen sagen ein Inselwachstum für Fehlanpassungen von mehr als 2% voraus.

**Substratwahl** Der wahrscheinlich wichtigste Einfluß, der den technologischen Durchbruch von GaN-basierenden Anwendungen verzögerte, ist das Fehlen eines geeigneten Substratmaterials, das zu GaN gitterangepaßt und thermisch kompatibel ist [3]. Obwohl große Anstrengungen unternommen werden, GaN-Volumenkristalle herzustellen, müssen Nitridschichten bis heute heteroepitaktisch abgeschieden werden. Hierfür wurden unterschiedlichste Substratmaterialien getestet [1]. Tabelle 2.1 vergleicht die relevanten Eigenschaften von GaN und AlN mit denen der folgenden – und am meisten genutzten – Substrate.

**Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)** Aus historischen Gründen ist Saphir (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) das am meisten genutzte Substrat für die Nitrid-Epitaxie, da diese Verbindung chemisch und thermisch resistent ist und Substrate mit hoher Kristallqualität und glatten Oberflächen zu moderaten Preisen erhältlich sind [5]. In den letzten Jahren wurden gute Schichteigenschaften bis hin zur Kommerzialisierung von blauen LEDs berichtet, obwohl die Gitterfehlانpassung zu GaN +49% beträgt<sup>2</sup> und die thermische Ausdehnung dreimal kleiner als die von GaN ist. Saphir ein allerdings ein elektrischer Isolator, d. h., die LED-Strukturen müssen kostenintensiv durch Mesa-Ätzen kontaktiert werden. Ferner erschwert die hohe GaN-Defektdichte die Herstellung von Laserdioden auf Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [7].

**Si(111)** Die Integration von optischen Emittern und Detektoren mit der Si-Elektronik als auch die extrem reinen und preiswerten Si-Kristalle machen dieses Substratmate-

<sup>2</sup>Die Gitterfehlانpassung reduziert sich auf −14%, da GaN normalerweise von 30° verdreht aufwächst.

rial attraktiv für die Nitrid-Herstellung. Die untersuchten Epitaxie-Schichten weisen jedoch eine hohen Dichte an Versetzungen und Stapelfehlern auf [5]. Zusätzlich behindern kubische Einschlüsse, Antiphasengrenzen und die hohe Si-Reaktivität während der Nukleation die Herstellung von Epitaxie-Schichten mit hinreichender Bauelementqualität.

**SiC(0001)** Im Vergleich zu  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und Si beträgt die Gitterfehlenganpassung zwischen SiC(0001) und GaN lediglich 3.4%, die sich für AlN sogar auf 1% reduziert. Zudem besitzt das chemisch inerte SiC eine sehr hohe thermische Leitfähigkeit, die mit  $4.9 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$  noch höher als die von Kupfer ist. Schließlich sind sowohl *n*-dotiertes SiC(0001) mit  $n = 2\text{--}4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  als auch V-dotierte, semi-isolierende (SI) Substrate erhältlich. Zur Zeit sind die maximal 2'' großen Scheiben noch sehr teuer [CREE *n*-6H-SiC(0001): 1000 \$ bzw. SI-4H-SiC(0001): 2000 \$], der Preis dürfte jedoch in naher Zukunft durch die 3''-Volumenproduktion für kommerzielle Nitrid-Anwendungen rasch fallen.

Die auf SiC abgeschiedenen Nitrid-Schichten weisen eine hohe Kristallinität und geringe Versetzungsdichten auf [15]. Die hohe elektrische und thermische Leitfähigkeit macht das SiC zu *dem* Substrat für vertikal kontaktierbare Bauelemente [19], wie z. B. LEDs [32] und LDs [33], in denen die entstehende Wärme durch das Substrat effektiv abgeleitet werden kann. Andererseits eignet sich SI-SiC sehr gut für elektronische Anwendungen, wie z. B. Feldeffekttransistoren, die eine geringe Versetzungsdichte und Parallellleitfähigkeit erfordern [34, 35].

**GaN(0001)** Zweifelsfrei eröffnen GaN-Substrate, auf denen GaN homoepitaktisch abgeschieden werden kann, die Herstellung von Epitaxie-Schichten mit herausragenden strukturellen, optischen und elektronischen Eigenschaften [36]. Bisher konnten nur Porowski *et al.* GaN-Volumenkristalle aus einer  $1400\text{--}1700^\circ\text{C}$  heißen Ga-Schmelze bei  $\text{N}_2$ -Drücken von 12–20 kbar synthetisieren [4]. Diese Substrate ( $\varnothing$  10 mm) sind kommerziell jedoch nicht erhältlich.

Eine weitere Möglichkeit ist die Abscheidung von mehreren hundert Mikrometer dicken GaN-Schichten auf Saphir-Substraten mittels HVPE (*HVPE – hydride vapor phase epitaxy*), die nach Substratdünnung oder Laserablation als freistehende GaN-Substrate genutzt werden können. Solche Substrate besitzen Versetzungsdichten von ca.  $10^7 \text{ cm}^{-2}$  und sind schon kommerziell erhältlich.

Um noch geringere Versetzungsdichten zu erzielen, wurde die sogenannte ELOG-Technologie (*ELOG – epitaxial lateral overgrowth*) entwickelt [5]. Hierbei wird eine dünne GaN-Schicht, die auf Saphir abgeschieden wurde, mit einer ca. 100 nm dicken  $\text{SiO}_2$ -Streifenmaske derart präpariert, daß sich  $\mu\text{m}$ -breite freiliegende GaN-Fenster ergeben. Die nachfolgende GaN-Epitaxie findet ausschließlich auf dem freiliegenden GaN statt. Nach Erreichen der Maskendicke ermöglichen die hohen Wachstumstemperaturen der MOCVD bzw. HVPE eine Koaleszenz der GaN-Streifen infolge des ausgeprägten lateralen Wachstums [37]. Die maskierten Bereiche sind hierdurch frei von Fadenversetzungen. Auf diese Weise kann die Dichte an Fadenversetzungen auf ca.  $10^6 \text{ cm}^{-2}$  reduziert werden. Die komplexen Prozeßschritte werden bisher nur für versetzungssensible und teure Bauelemente, wie z. B. der blauen LD von NICHIA, genutzt [38].

**Problematik der Heteroepitaxie – ein Analogon** Im folgenden soll versucht werden, anhand eines Analogons die Schwierigkeiten der GaN-Heteroepitaxie aufzuzeigen: Das System GaAs-auf-Si hat sich zu einem Modellsystem für die Heteroepitaxie von zwei sehr unterschiedlichen Komponenten entwickelt [39]. Die hier gewonnen Erkenntnisse können zum Teil auf das Materialsystem GaN-auf-SiC übertragen werden.

Die Epitaxie von GaAs auf Si hat zu Beginn und Mitte der achtziger Jahre große Hoffnungen für die Verbesserung bestehender Halbleiterbauelemente und für die Erforschung und Entwicklung neuer Bauelementkonzepte geweckt. Man hatte gehofft, mit dem Si preiswerte, großflächige und versetzungsarme Substrate mit guter Wärmeleitfähigkeit und großer thermischer wie mechanischer Stabilität für V-III-Bauelemente gefunden zu haben. Darauf basierend sollten die Vorteile der Si-Technologie (elektrische Signalverarbeitung auf lateralem sub- $\mu\text{m}$ -Bereich) mit denen der V-III-Bauelemente (kleinere effektive Elektronenmasse, Bandstruktur mit direkter Energielücke, vielfältige Möglichkeiten des Band-Gap-Engineering und Beständigkeit gegen Strahlung) durch eine monolithische Intergration kombiniert werden. Die Anzahl der Publikationen auf diesem Gebiet nahm jedoch Mitte der neunziger Jahre drastisch ab: der Euphorie folgte Ernüchterung.

Ähnlich wie für die Epitaxie von GaN auf SiC-Substraten folgen die meisten Schwierigkeiten von GaAs(100)-auf-Si(100) direkt aus Tabelle 2.2. Der Unterschied in den Gitterkonstanten beträgt  $-4.1\%$ . Die kritische Schichtdicke für pseudomorphes Aufwachsen von GaAs auf Si beträgt somit nur wenige Monolagen GaAs [40]. Danach wird die Fehlanpassung durch den Einbau von *misfit*-Versetzungen (ca.  $10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ) abgebaut. Dessen ungeachtet werden für GaAs-auf-Si fadenförmige Versetzungen (*threading dislocation*) in der Größenordnung  $10^6$ – $10^8 \text{ cm}^{-2}$  beobachtet [41]. Während diese Dichten für GaAs-basierende Bauelemente noch um einen Faktor  $10^2$  zu hoch sind, scheinen die extrem hohen Versetzungsdichten in Gruppe-III-Nitriden von bis zu  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  keinen gravierenden Einfluß auf das Operations- und Zeitverhalten von (In,Ga)N-LEDs zu haben. Für die Fabrikation und Lebensdauer von LDs hingegen spielen geringe Versetzungsdichten eine entscheidende Rolle.

Der große Unterschied in den thermischen Ausdehnungskoeffizienten bewirkt, daß sich GaAs beim Abkühlen von Wachstums- auf Raumtemperatur doppelt so schnell zusammenzieht wie Si. Daher steht die relaxierte GaAs-Schicht bei Raumtemperatur unter Zug- bzw. tensiler Spannung, die mit Erreichen einer kritischen Schichtdicke von etwa  $5$ – $7 \mu\text{m}$  durch Risse in der Epitaxie-Schicht abgebaut wird. Aufgrund der vergleichbaren Unterschiede in der thermischen Ausdehnung von Epitaxie-Schicht und Substrat (Tab. 2.1 und Tab. 2.2) sollte auch GaN, das auf SiC abgeschieden wurde, unter tensiler Spannung stehen.

**Tabelle 2.2:** Strukturelle und thermische Parameter von GaAs und Si.  $a$ ,  $\Delta$ ,  $\alpha$  und  $\lambda$  bezeichnen die Gitterkonstante, die Gitterfehlanpassung, den linearen thermischen Expansionskoeffizienten und die thermische Leitfähigkeit. Der Preis bezieht sich auf  $2''$ -Scheiben.

	$a$ (Å)	$\Delta$ (%)	$\alpha$ ( $10^{-6} \text{ 1/K}$ )	$\lambda$ (W/cm K)	Preis (\$)
GaAs(100)	5.65315	0	6.0	0.4	150
Si(100)	5.43072	$-4.1$	2.3	1.5	20



Zusätzlich kommt es bei der Epitaxie des (polaren) Verbindungshalbleiters GaAs auf dem (unpolaren) Elementhalbleiter Si zur Ausbildung von sogenannten Antiphasendomänen, an deren Grenzflächen elektrische Ladungen hoher Dichte akkumulieren können und so zu unerwünschten Dotiereffekten führen [42]. Um die Bildung dieser Antiphasendomänen zu unterdrücken, müssen die Si(100)-Substrate entlang der [011]-Richtung leicht verkippt sein ( $1-4^\circ$ ).

Nach einer sorgfältigen Präparation wurden spezielle Nukleations- und Temperaturbedingungen genutzt (Mehrschritt-Epitaxie), um die Kristallinität der nachfolgenden GaAs-Schicht zu verbessern [43]. Wegen der schlechten Benetzung von GaAs auf Si kommt es zu Beginn der Epitaxie zu einem sofortigem 3D-Wachstum und somit zur Bildung von Inseln, die bei Koaleszenz Kristalldefekte, wie z. B. Fadenversetzungen, generieren [39].

## 2.2 Reaktive MBE

**Aufbau** Die hier verwendete MBE-Anlage (M2) ist ein UHV-Zweikammersystem, das aus einer Lade- und einer Wachstumskammer besteht. Eine Ionengetterpumpe gewährleistet einen Ladekammerdruck von  $5 \times 10^{-8}$  Torr. Die Wachstumskammer wird wahlweise durch eine Ionengetter-, Turbomolekular- oder Kryopumpe auf einen Basisdruck von  $5 \times 10^{-10}$  Torr evakuiert. Zusätzlich ist diese Kammer im Inneren mit einem Stickstoff-gekühlten Kryoschild (*LN<sub>2</sub> cryo shroud*) ausgekleidet.

Das Substratmaterial, auf dem eine Schicht abgeschieden werden soll, ist auf einem Molybdän-Halter befestigt. Während des Wachstums muß das Substrat geheizt werden, um eine genügend hohe Oberflächenbeweglichkeit für die auftreffenden Atome bzw. Moleküle zu erzielen. Die Zulieferung der Atome für das Kristallwachstum geschieht aus sogenannten Effusionszellen, in denen die Ausgangsmaterialien – wie z. B. Ga, Al, In, Si und Mg – durch elektrisches Heizen aus Bornitrid-Tiegeln verdampft werden, deren Öffnungen konzentrisch auf das Substrat gerichtet sind. Sogenannte Shutter – mechanisch betriebene Klappen – werden von außen gesteuert geöffnet und geschlossen, wodurch der Molekularfluß ein- und ausgeschaltet wird. Die Wachstumsrate der Epitaxieschicht wird durch den Teilchenfluß bzw. die Tiegeltemperatur gesteuert.

Durch einen Gasinjektor<sup>3</sup> wird der Gruppe-V-Precursor NH<sub>3</sub> dem Wachstumsprozeß zugeführt. Ein Massenflußregler (MKS) dosiert den NH<sub>3</sub>-Fluß mit einer Genauigkeit von  $\pm 0.1$  sccm.<sup>4</sup> Der Reinheitsgrad des Ammoniak (SOLKATRONIX 'blue grade') beträgt 6.5 N. Die Restfeuchtigkeit des Gases wird durch einen ungeheizten Zeolith-Filter (SAES GETTER) auf 8...9 N reduziert.

Ferner ist die MBE-Anlage mit einer Elektronenkanone (20 keV) und einem Fluoreszenzschirm zur Beobachtung von Elektronenbeugungsbildern (RHEED-Bildern) ausgestattet. Unter streifendem Einfall des Elektronenstrahls ( $1-4^\circ$ ) geben die Beugungsbilder Aufschluß über die kristallographische Struktur der wachsenden Oberfläche. Aufgrund des kleinen Impulsbeitrages des Elektronenstrahls normal zur Substrat-

---

<sup>3</sup>Das Prinzip des Injektor basiert auf der kollimiert-gerichteten Überschall-Expansion des NH<sub>3</sub>-Molekularstrahls aus einer konischen Düsenöffnung ( $\varnothing 0.3$  mm).

<sup>4</sup>1 sccm entspricht einem Durchfluß von  $1 \text{ cm}^3/\text{min}$  bei 1 bar und 300 K.

oberfläche ist die RHEED-Analyse nur für die obersten Monolagen der Epitaxie-Schicht sensitiv und stellt somit eine *in situ*-Oberflächenanalysemethode dar.

Der entscheidende Vorteil der MBE gegenüber anderen Epitaxieverfahren, wie z. B. der MOCVD, besteht in der schnellen Umschaltbarkeit zwischen verschiedenen Molekularstrahlen und damit der Möglichkeit, atomar scharfe Dotierungs- und Kompositionsprofile auf einfache Weise zu erzeugen. Die Füllung der Effusionszellen mit Quellenelementen, die früher die MBE-Standzeiten limitierte, kann heutzutage ohne Öffnen des gesamten Rezipienten vorgenommen werden. Solche MBE-Systeme sind besonders für die industrielle Fertigung von Interesse.

**Technologische Vor- und Nachteile** Ein wichtiger technologischer Aspekt bei der Nitrid-Epitaxie liegt in der Aktivierung des Stickstoffs. Normalerweise wird die starke N-N-Dreifachbindung von molekularem Stickstoff ( $E_B^{N-N} = 9.5$  eV) in Plasma-Cracker-Zellen (DC, RF, ECR-Plasmen) ionisiert und angeregt und so dem Wachstumsprozeß zugeführt.

Das Verhältnis zwischen ionisiertem N und angeregtem  $N_2$  sollte möglichst klein sein [44]. Der überschüssige Impuls (3–20 eV) der atomaren Radikale kann nicht wie bei den molekularen Species von dem Bindungspartner aufgenommen werden, wodurch es zu Sputter-Effekten und somit zur elektrischen und morphologischen Degradation der Epitaxie-Schicht kommt [45].

Zusätzlich verhindern Langzeiteffekte, z. B. die Abnahme der Wachstumsrate bei sonst konstanten Plasmaparametern,<sup>5</sup> einen kontinuierlichen Betrieb.  $N_2$ -Plasmaquellen reagieren sehr empfindlich auf Druck- oder Temperaturveränderungen, sie sind somit bisher nur bedingt im industriellen Umfeld einsetzbar.

Als exzellente Alternative kann der  $NH_3$ -Precursor eingesetzt werden. Die vergleichsweise kleine Bindungsenergie von  $E_B^{NH_3} = 3.85$  eV [46] ermöglicht eine effiziente thermische Aufspaltung des Moleküls bei moderaten Temperaturen von  $T \geq 500^\circ C$ , die durch metallische Katalysatoren noch verstärkt wird. Die kostengünstige und einfache Injektortechnik der  $NH_3$ -Quelle garantiert hohe und zeitstabile Wachstumsraten. Die Wachstumsrate wird nur durch den Ga-Fluß und die Pumprate des UHV-Systems begrenzt.

Der Einfluß des Wasserstoffs auf das Wachstum und die Kristalleigenschaften von Nitriden ist noch nicht ausreichend verstanden. Die H-Konzentration in Gruppe-III-Nitriden kann bis zu einigen  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  betragen [47], wobei die Passivierung von Akzeptorzuständen beobachtet wurde [7]. Mayer *et al.* berichten die H-unterstützte Entfernung von Oberflächenverunreinigungen [46]. Ferner werden Vermutungen diskutiert, nach denen sich die Migrationslänge der Gruppe-III-Metalle durch die Absättigung von freien Oberflächenzuständen mit H vergrößert [48].

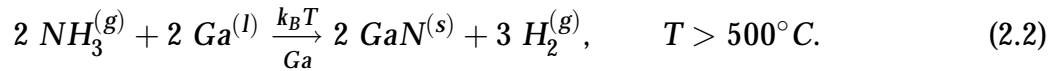
Die Aktivierung des  $NH_3$ -Precursors steigt mit der Probertemperatur an, deshalb koppelt das wachstumstechnisch wichtige Flußverhältnis zwischen Ga und  $NH_x^*$  (V/III-Verhältnis) neben dem Ga-Fluß auch an die Substrattemperatur. Ein Nachteil der reaktiven MBE gegenüber der plasma-unterstützten MBE scheint die Synthese von  $In_xGa_{1-x}N$ -Schichten mit einem In-Gehalt von  $x > 0.2$  zu sein. Die Ursache dafür ist bisher nicht geklärt [32].

---

<sup>5</sup>Die Ursache dafür liegt in dem 'Verstopfen' der kleinen Aperturöffnungen ( $\varnothing$  ca. 0.5 mm). Andererseits bedingen größere Aperturdurchmesser ein Ansteigen des Anteils ionisierten Stickstoffs.

Während der GaN-Epitaxie wird das Kälteschild in der Wachstumskammer mit flüssigem Stickstoff auf  $-196^\circ\text{C}$  eingekühlt. Da  $\text{NH}_3$  bei  $-33^\circ\text{C}$  und  $-78^\circ\text{C}$  kondensiert bzw. erstarrt, akkumuliert festes  $\text{NH}_3$  am Kälteschild und muß mit dem 'Auftauen' der UHV-Kammer nach dem Probenwachstum vorsichtig und sukzessive durch die Turbomolekularpumpe aus der Kammer gepumpt werden.<sup>6</sup>  $\text{NH}_3$  ist ein korrosiver Stoff, deshalb müssen alle Dichtungen, Pumpen, Stähle und andere UHV-Materialien chemisch resistent sein. In der Implementierungsphase wurde an der Ga- und Al-Zelle wiederholt ein 'Überlaufen' der Quellenelemente durch  $\text{NH}_3$ -moderiertes 'Hochkriechen' beobachtet, der zum Ausfall der Effusionszellen führte. Durch ein spezielles pBN-Tiegeldesign konnte dieser Effekt unterbunden werden.

**Wachstumskinetik des  $\text{NH}_3$ -Precursors** Im thermodynamischen Gleichgewicht kann die Dissoziation von  $\text{NH}_3$  bei den relevanten Drücken und Temperaturen durch das Reaktionsgleichgewicht  $2 \text{NH}_3 \leftrightarrow \text{N}_2 + 3 \text{H}_2$  beschrieben werden. Im thermodynamischen Gleichgewicht ist der Precursor über 200 K fast vollständig dissoziiert [49]. Nicht-Gleichgewichtsbedingungen, wie die Epitaxie, limitieren dagegen wachstumskinetisch die vollständige Zerlegung unter 1100 K. Diese kinetische Barriere kann durch Katalysatoren, wie Mo, Fe, W und Ga, herabgesetzt werden, wodurch sich die Zeit zum Erreichen des thermischen Gleichgewichtes reduziert [49]. Dieser Prozeß wird auch als On-Surface-Cracking bezeichnet:



Der Betrag von dissoziiertem  $\text{NH}_3$  ist bis zu Temperaturen von  $T \leq 950$  K nahezu unabhängig von  $\text{NH}_3$ -Fluß. In diesem Regime ist der Dissoziationsprozeß kinetisch limitiert, wohingegen bei höheren Temperaturen das Dissoziationsverhältnis sättigt und somit der totale Betrag von dissoziiertem  $\text{NH}_3$  durch den Fluß limitiert wird.

Neben der pyrolytischen Dissoziation muß auch der Einfluß von Katalysatoren auf die Dissoziation betrachtet werden. In dieser Arbeit wird, anders als bei anderen Gruppen [34, 50, 49], der Ammoniak im Injektor nicht thermisch aktiviert, weshalb nur Prozesse auf der Wachstumsoberfläche eine Rolle spielen. Unter stöchiometrischen oder Ga-stabilen Wachstumsbedingungen beschleunigen Ga-Adatome auf der Wachstumsfront die  $\text{NH}_3$ -Dissoziation. Während des Dissoziationsprozesses wird jeder Oberflächenzustand eine bestimmte Zeit besetzt. Bei geringen  $\text{NH}_3$ -Flüssen finden alle  $\text{NH}_3$ -Moleküle einen Oberflächenzustand, um zu dissoziieren, da die  $\text{NH}_3$ -Fluß kleiner als die Reaktionsrate des Dissoziationsprozesses ist. Da die Anzahl dieser katalytischen Oberflächenzustände im zeitlichen Mittel begrenzt ist, sättigt der katalytische Dissoziationsanteil von einem gewissen  $\text{NH}_3$ -Fluß ab und wird flußunabhängig. Höhere Wachstumstemperaturen beschleunigen den Dissoziationsprozeß. Der gesamte Prozeß kann durch

$$D = Q\Gamma \left[ 1 + \exp \left( \frac{E_a}{k(T - T_0)} \right) \right]^{-1} \quad (2.3)$$

---

<sup>6</sup>Mit Erreichen der Siedetemperatur kommt es zu einem schlagartigen Druckanstieg in der Wachstumskammer, der nur durch periodisch-kurzzeitiges Öffnen des  $\text{LN}_2$ -Ventiles auf  $2 \times 10^{-3}$  Torr stabilisiert werden kann. Die Ventilsteuerung wurde über eine *feedback loop* mit dem Druckmeßgerät der Wachstumskammer gekoppelt. Der kritische Druckanstieg findet ca. 1.5 h nach dem Starten des Auftauens statt. Je nach Menge des akkumulierten  $\text{NH}_3$  dauert das Abpumpen bis zu 2 h.



beschrieben werden [49], wobei  $D$  der aktivierte  $\text{NH}_3^*$ -Fluß und  $Q$  der ankommende  $\text{NH}_3$ -Fluß ist.  $T_0$  und  $\Gamma$  sind konstante Fitparameter, wobei  $Q$  von der Anzahl der Oberflächenzustände und der Effizienz des Adsorptionsprozesses abhängt.  $E_a$  ist die Aktivierungsenergie im kinetisch kontrolliertem Dissoziationsregime. Es wird vermutet, daß  $\text{NH}_3$  nur durch stark gebundene Ga-Adatome aufgespalten wird. Dagegen blockieren überschüssige und schwach gebundene Ga-Atome die darunterliegenden reaktiven Oberflächenzustände der Ga-Adatome und reduzieren so die katalytische  $\text{NH}_3$ -Dekomposition [51, 52].

Mesrine *et al.* konnten während Migrations-verstärkter Epitaxie (*MEE – migration enhanced epitaxy*) von GaN durch Messungen der Laser-Reflektivität und des Druckes der Molekularstrahlen (*BEP – beam equivalent pressure*) erstmals den Anteil des aktivierten  $\text{NH}_3$  auf Ga-terminierten GaN-Oberflächen bestimmen [53]. Danach setzt die  $\text{NH}_3$ -Dissoziation ab  $500^\circ\text{C}$  ein und steigt bis  $600^\circ\text{C}$  linear auf 3.8% an, bei höheren Proben-temperaturen sättigt der für das GaN-Wachstum verfügbare  $\text{NH}_3$ -Anteil bei ca. 4%. Liu *et al.* beobachteten eine  $\text{NH}_3$ -Dissoziation von 6% bei  $870^\circ\text{C}$  [52].

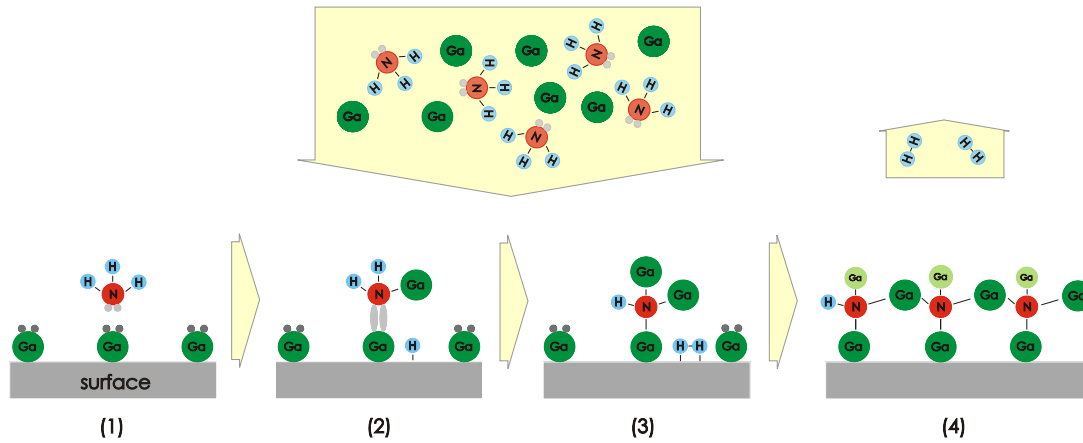
Bei Temperaturen über  $800^\circ\text{C}$  kann die Dekomposition von GaN unter Vakuumbedingungen [ $2 \text{ GaN} \rightarrow 2 \text{ Ga} + \text{N}_2$ ] nicht mehr vernachlässigt werden, so daß ein Teil des aufgespaltenen  $\text{NH}_3$  lediglich zur thermischen Stabilisierung des GaN agiert [54]. Dieses wird beim MOCVD-Wachstum von GaN deutlich: Die typischen Wachstumstemperaturen von über  $1000^\circ\text{C}$  erfordern extrem hohe V/III-Verhältnisse ( $10^3$ – $10^6$ ), um den austretenden Stickstoff zu kompensieren [55]. Die Aktivierungsenergie der GaN-Dekomposition liegt bei  $3.2 \pm 0.1 \text{ eV}$  [56].

**RMBE-Oberflächenchemie** An der Wachstumsfront können die Ga-Atome entweder (i) durch Chemisorption mit  $\text{NH}_3$  reagieren, (ii) aufgrund der Van der Waals-Wechselwirkung adsorbieren, (iii) migrieren oder (iv) wieder desorbieren. Im Idealfall führt die Migration der Teilchen auf der Oberfläche zur Chemisorption unter Bildung von zweidimensionalen Keimen, da sich dadurch die Anzahl der Bindungspartner erhöht. Aus demselben Grund ist der Einbau an Stufen, wenn vorhanden, energetisch bevorzugt.

Bei großer Oberflächenbeweglichkeit, wie sie für hohe Wachstumstemperaturen typisch ist, erfolgt das Wachstum somit Schicht für Schicht. Mit zunehmender freier Weglänge kann ein Übergang von der Bildung lokaler 2D-Keime zum Einbau an Stufen erfolgen, die durch die Anlagerung der Spezies über die Oberfläche 'fließen' (*step flow*).

Erstaunlicherweise ist die Aktivierungsenergie der Ga-Desorption bei der reaktiven MBE mit 0.65 eV bedeutend kleiner als bei der PAMBE ( $E_a = 2.2 \text{ eV}$  in Ref. [57]).<sup>7</sup> Das bedeutet, daß bei typischen Wachstumstemperaturen von  $700^\circ\text{C}$  der Ga-Desorptionsverlust bereits mehr als 30% beträgt [49]. Evans *et al.* beobachteten für  $J_{\text{NH}_3} = 1 \times 10^{-4} \text{ Torr}$  eine temperaturabhängige Aktivierungsenergie, die zwischen  $625^\circ\text{C} \leq T_{\text{sub}} \leq 740^\circ\text{C}$  bei 1.4 eV und zwischen  $740^\circ\text{C} \leq T_{\text{sub}} \leq 825^\circ\text{C}$  bei 0.4 eV liegt [58]. Bei kleineren  $\text{NH}_3$ -Flüssen verschwindet für Temperaturen von  $T_{\text{sub}} \geq 800^\circ\text{C}$  vollständig die kinetische Barriere der Ga-Desorption. Diese Beobachtung erklärt sich aus der kurzen Residenz-Zeit der Ga-Adatome auf der Wachstumsfront. Normaler-

<sup>7</sup>Die Verdampfungsenthalpie von flüssigem Ga beträgt 2.8 eV bei 1 bar.



**Abbildung 2.1:** Vereinfachte chemische Oberflächenreaktionen, die während der reaktiven MBE aus den Komponenten Ga und  $\text{NH}_3$  zur GaN-Formation führen [60].

weise wird die Akkumulation und Desorption von Ga durch Erhöhen des  $\text{NH}_3$ -Flusses unterdrückt, da sich die Wahrscheinlichkeit der GaN-Formation erhöht (Massenerhaltungsgesetz:  $R_{\text{GaN}} = J_{\text{Ga}} - J_{\text{Ga,desorb}} - J_{\text{Ga,accum}}$ ).

Die Existenz von zwei Aktivierungsenergien läßt unterschiedliche Bindungsarten der Ga-Adatome – und damit verschiedene Desorptionsreaktionen – auf der Probenoberfläche vermuten. Die kleinen Bindungsenergien der Ga-Adatome legt ein Zusammenspiel mit H nahe, bei dem Ga-Atome auf H-terminierten GaN-Oberfläche physisorbiert werden und somit kleinere Bindungsenergien haben. Daraus könnte abgeleitet werden, daß sich die Kinetik des Ga-Einbaus während des GaN-Wachstums von H-freien Wachstumsprozessen wie der PAMBE deutlich unterscheiden sollte. Als speziellen sollten die schwächeren Bindungen der Ga-Adatome deren Migrationsfähigkeit erhöhen [59]. Im Resultat können glatte Schichtoberflächen und -grenzflächen mit ausgedehnten atomaren Terrassen erwartet werden. Im Vergleich zu PAMBE-Schichten sollte die Morphologie der RMBE-Schichten demnach eher der von MOCVD- bzw. HVPE-Schichten ähneln.

Die GaN-Synthese mittels  $\text{NH}_3$ -Precursor läuft über komplexe Oberflächenreaktionen zwischen Ga- und  $\text{NH}_x$ -Adsorbaten ab. Kim *et al.* schlagen hierfür ein Reaktionsmodell mit drei Zwischenreaktionen vor (Abb. 2.1) [60]. Zuerst adsorbiert  $\text{NH}_3$  auf einem Ga-Adatom, wobei die Ga–N-Bindung durch das freie Elektronenpaar des  $\text{NH}_3$  entsteht. Danach erfolgt ein sukzessiver Austausch der beiden H-Atome durch Ga. Die freien Bindungen werden durch die abgespalteten H-Atome passiviert. Schließlich formiert sich GaN unter  $\text{H}_2$ -Desorption.

Neben der pyrolytischen Aktivierung des  $\text{NH}_3$ -Moleküls wird auch der katalytische Einfluß von Ga auf die Aktivierung diskutiert. Chemisch betrachtet verhält sich  $\text{NH}_3$  wie eine harte Lewis-Base (*lone pair electron donor*), wohingegen Ga als elektrondefizitäre harte Lewis-Säure (*lone pair electron acceptor*) wirkt. Da die Bildung eines Lewis-Komplexes aus harten Säuren und harten Basen chemisch stark favorisiert wird, reduziert die Existenz von Ga die  $\text{NH}_3$ -Aktivierungsenergie. Dieses Modell kann somit die katalytische Dekomposition von  $\text{NH}_3$  auf Ga-terminierten Oberflächen beschreiben.

### 3 Synthese von GaN und (Al,Ga)N auf SiC(0001)

In diesem Kapitel werden alle Prozeßschritte zur Herstellung von GaN- und (Al,Ga)N-Schichten mittels reaktiver MBE vorgestellt. Im ersten Abschnitt wird zunächst die Oberflächenpräparation der SiC-Substrate beschrieben. Der zweite Abschnitt widmet sich dem epitaktischen Wachstum der 1–5  $\mu\text{m}$  dicken GaN- und (Al,Ga)N-Schichten. Im letzten Abschnitt werden schließlich die Einflüsse verschiedener Wachstumsparameter auf die Kristalleigenschaften diskutiert.

#### 3.1 Substratwahl und -präparation

Im Gegensatz zur Homoepitaxie von GaAs auf GaAs-Substraten muß GaN heteroepitaktisch auf artfremden Substraten hergestellt werden, da freistehende GaN-Substrate zur Zeit noch nicht kommerziell erhältlich sind. In der vorliegenden Arbeit wurden alle Nitridschichten auf Siliziumcarbid (SiC) abgeschieden.

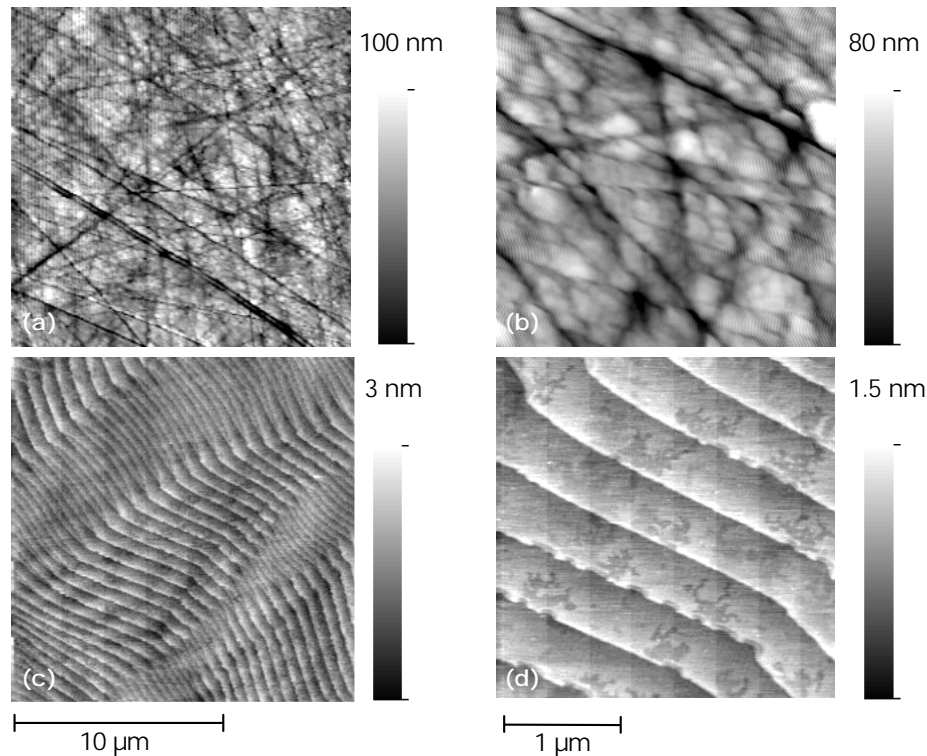
Die von CREE RESEARCH INC. bezogenen 2"-Scheiben (*on-axis, Si-face, research quality*) wurden hierbei vom Hersteller mechanisch mit Diamant poliert. In Abbildung 3.1(a) wird die charakteristische Oberfläche der gelieferten SiC-Substrate mittels Atomkraftmikroskopie (AFM) wiedergegeben. Tiefe Kratzspuren (*scratches*) sind mit einer 30°-Rotationssymmetrie deutlich zu erkennen, zusätzlich wird die oberflächennahe Kristallinität der Substrate durch die mechanische Politur zerstört (*damage layer*).

Im folgenden werden die *ex situ*- und *in situ*-Prozesse zur Verbesserung der Oberflächenqualität der SiC-Substrate beschrieben, da die Kristalleigenschaften der Epitaxie-Schichten und deren Reproduzierbarkeit kritisch davon abhängen.

**Thermo-Chemisches Ätzen der Substrate** Die chemische Resistenz von SiC macht eine konventionelle Behandlung mit Säuren oder Basen unmöglich [61], da – im Gegensatz zu Saphir-Substraten – selbst die polykristalline Oberflächenschicht nicht angegriffen wird. Allerdings wird SiC bei sehr hohen Temperaturen durch angeregten Wasserstoff oder Sauerstoff<sup>1</sup> angegriffen. Dieser seit 1965 aus der Oberflächenphysik [63] bekannte – in der Materialwissenschaft jedoch wenig etablierte – Effekt [64, 65] diente als Idee zum Aufbau eines elektrisch heizbaren, wassergekühlten Ofens, durch den Formiergas (20% H<sub>2</sub> + 80% Ar) und Spülgas (N<sub>2</sub>) geleitet werden kann. Das Ätzen des SiC-Kristalls erfolgt durch die thermische Aktivierung von H<sub>2</sub> bei einer Temperatur von ca. 1600°C. In Abhängigkeit vom H<sub>2</sub>-Gasfluß werden so Ätzraten von einigen  $\mu\text{m}/\text{min}$  erreicht. Die resultierende Morphologie der Substrate zeigt wohlgeordnete Terrassensysteme mit Breiten von bis zu 1  $\mu\text{m}$  sowie atomare Stufen [Abb. 3.1(c) und (d)], deren Höhe einer SiC-Einheitszelle entsprechen [z. B. 15.12 Å für 6H-SiC(0001)]. Erstaunlicherweise wird die SiC-Oberfläche lagenweise geätzt (inverser Stufenfluß). Punktförmige Kristalldefekte im SiC verursachen das Entstehen von hexagonalen Gruben (*etch pits*) mit einer Tiefe von einigen 10 nm und einem Durchmesser von ca. 1  $\mu\text{m}$ .

---

<sup>1</sup>Hierbei wird die SiC-Oberfläche bei 1300°C zuerst oxidiert und dann die Oxidschicht mit HF entfernt (*sacrificial oxidation*) [62].



**Abbildung 3.1:** AFM-Bilder, die die unbehandelte (*as received*) SiC-Oberfläche [(a) und (b)] und die H<sup>+</sup>-geätzte Oberfläche [(c) und (d)] wiedergeben. Die Ausbildung von wohlgeordneten Terrassen, dessen Breiten bis zu 1 µm betragen, sind in (d) deutlich zu erkennen. Die Stufenhöhe von 15 Å entspricht einer 6H-Einheitszelle. Zu beachten sind die Höhenskalierungen in allen Bildern. Das Ätzen von 4H-SiC liefert eine vergleichbare Oberflächenmorphologie.

**Substratreinigung und -montage** Vor dem thermochemischen Ätzen wurden die Substrate jeweils 5 min in Trichloräthylen, Aceton, Methanol und deionisiertem Wasser im Ultraschallbad gereinigt, um eventuelle Fettrückstände zu entfernen. Nach dem H<sup>+</sup>-Ätzen wurde diese Reinigungsprozedur wiederholt, da der Substrat-Transfer an Atmosphäre stattfand. Oberflächenkontaminationen, wie z. B. Kohlenwasserstoffe und Oxide, können durch die Säurebäder 1:1 HNO<sub>3</sub>:H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (10 min), 5:3:3 HCl:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>:H<sub>2</sub>O (3 min) entfernt werden. Durch das Spülen in 1:10 HF:H<sub>2</sub>O (1 min) können freie Oberflächenbindungen teilweise mit H passiviert werden. Trotzdem verbleiben O<sub>x</sub>-Suboxide auf der SiC-Oberfläche. Die Substratreinigung wird durch ausgiebiges Spülen in deionisiertem Wasser und Trocknung mit N<sub>2</sub>-Gas unter Reinraumbedingungen abgeschlossen.

Da die SiC-Substrate für infrarote Strahlung transparent sind, die Epitaxie von GaN-basierenden Schichten jedoch Substrattemperaturen von über 600°C erfordert, muß entweder die Rückseite des SiC-Substrates mit einem absorbierenden Metall, wie z. B. Titan (Ti) oder Molybdän (Mo), bedampft werden oder ein Thermokontakt mittels Indium (In) zu einem weiteren IR-absorbierenden Substrat hergestellt werden.

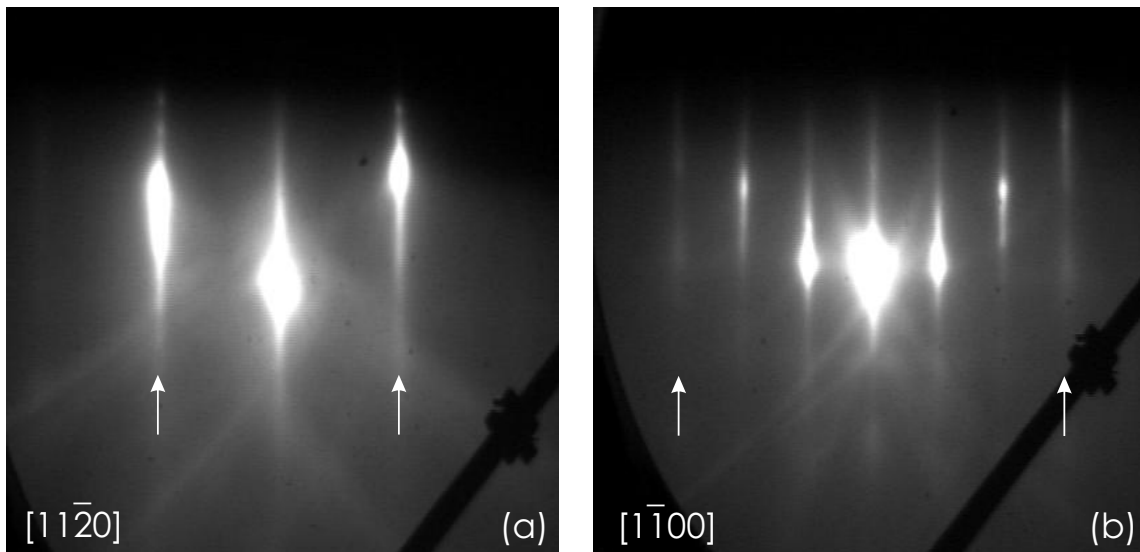
Eine Metallisierung kam in dieser Arbeit nicht in Frage, da sie von der nachfolgenden Reinigung in wenigen Sekunden weggeätzt werden würde. Andererseits würde eine Metallisierung nach der Reinigung zu erheblichen Verunreinigungen des UHV-Systems führen. In den ersten Versuchen wurden die Substrate deshalb mittels In di-

rekt auf die Mo-Halter aufgeklebt. Aufgrund der Oberflächenrauigkeit der Halter und der damit verminderten Adhäsionskräfte zum Substrat kam es zu einer hohen Verlustquote während des Wachstums bei 700°C.

Eine deutliche Verbesserung der Substrathaftung konnte durch die Anwendung einer speziellen Klebtechnik auf glatten Si(100)-Substraten erreicht werden. Der ultradünne In-Film zwischen SiC und Si vermindert das Verdampfen des flüssigen In und ermöglicht so ein Wachstum von bis zu acht Stunden. Die Si-Substrate wurden mit Tantal-Drähten auf den Mo-Haltern befestigt. Die komplette Substratmontage erfolgte unter Reinraumbedingungen und laminarem Luftfluß (*flow box*).

**in situ-Reinigung der Substratoberfläche** Die auf Mo-Haltern befestigten Substrate werden in die Ladekammer des MBE-Systems eingeschleust. Hier können Wasserkondensate, die sich während der Substratmontage auf den Mo-Haltern bilden, desorbiert und abgepumpt werden. Dies geschieht durch dreistündiges Ausheizen bei 250°C. Die so gereinigten Substrate werden in die LN<sub>2</sub>-gekühlte Epitaxie-Kammer geschleust und bei 600°C für weitere 30 min ausgegast.

Die *in situ*-Reinigung des SiC von Oberflächenoxiden spielt bei der Optimierung der Eigenschaften GaN-basierenden Heterostrukturen eine Schlüsselrolle. Das von Kaplan [66] vorgeschlagene und erstmals von Strite *et al.* [67] angewandte Verfahren beruht auf der Getterwirkung von Ga, welches bei Substrattemperaturen von 600°C auf dem rotierenden Substrat abgeschieden wird und mit verbliebenen Kontaminationen auf der epitaktischen Oberfläche reagieren kann. Die Reaktionsprodukte, wie z. B. Ga<sub>2</sub>O, werden durch Heizen des Substrates auf 700°C mit dem Ga desorbiert. Der Vorteil gegenüber den ebenfalls in der MBE zur Verfügung stehenden Elementen Al und Si besteht in dem höheren Ga-Dampfdruck und den dadurch benötigten niedrigeren Substrattemperaturen. Der Zyklus Deposition-Desorption wird mehrmals wiederholt und dabei mit RHEED überwacht.



**Abbildung 3.2:** RHEED-Bilder eines SiC(0001)-Substrates nach der *in situ*-Reinigung mittels Ga-Deposition und -Desorption. Während im  $[11\bar{2}0]$ -Azimut (a) nur die fundamentalen Streaks (durch Pfeile markiert) zu erkennen sind, wird im  $[1\bar{1}00]$ -Azimut (b) zusätzlich eine deutliche Dreifach-Rekonstruktion detektiert.



Im Laufe dieser Reinigungsprozedur bildet SiC(0001) bei Temperaturen über 600°C eine UHV-stabile ( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ )R30°-Rekonstruktion aus, deren Intensität mit Abnahme der Kontamination ansteigt. Owman *et al.* [68] erklären diese Überstruktur mit einer 1/3-Monolage aus überschüssigen Si-Adatomen, die auf der obersten Si-C-Bilage trimerisieren und so eine Adatom-Rekonstruktion ausbilden. Die Absättigung von freien Bindungen macht diese Rekonstruktion sehr stabil [69]. Die Reinheit der Substratoberfläche kann somit durch die RHEED-Intensität der Dreifach-Rekonstruktion im [1 $\bar{1}$ 00]-Azimut bewertet werden (Abb. 3.2).

**‘Nitridierung’ der Substratoberfläche** Im Gegensatz zu Saphir kann bei SiC keine der beiden Komponenten Si und C gegen N ausgetauscht werden. Zudem ist die Aufspaltung von Ammoniak in  $\text{NH}_x^*$  und  $\text{H}^*$  in dem hier verwendeten Temperaturbereich ohne den katalytischen Einfluß von Ga fraglich [34]. Übereinstimmend konnten unter  $\text{NH}_3$ -Fluß keine Veränderungen im RHEED-Beugungsbild des SiC und den Kristalleigenschaften der GaN-Schichten festgestellt werden, so daß auf die ‘Nitridierung’ und den von einigen Gruppen beschriebenen  $\text{H}^*$ -Reinigungseffekt [46] verzichtet wurde.

### 3.2 Nukleation von GaN und (Al,Ga)N

Dieser Abschnitt diskutiert den essentiellen Einfluß der Nukleationsbedingungen von GaN bzw.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  auf das nachfolgende Wachstum der GaN- und (Al,Ga)N-Pufferschichten.

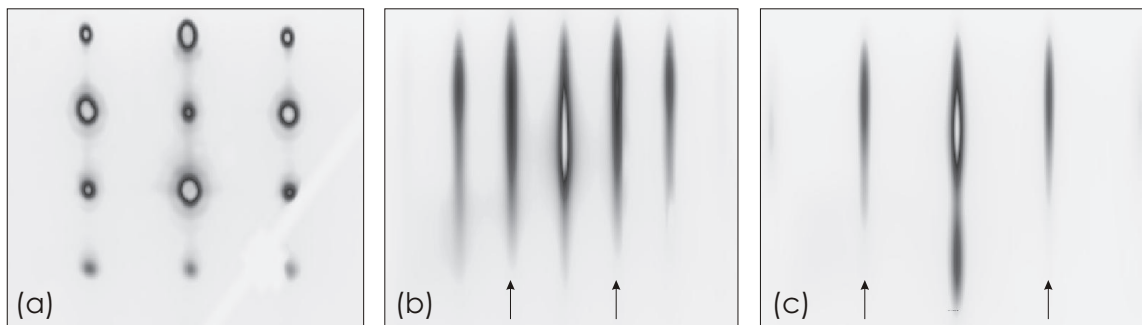
**Nukleation von GaN** Die in Kapitel 2.1 beschriebenen Wachstumsmechanismen der Heteroepitaxie erfordern im allgemeinen eine gezielte Beeinflussung der Nukleation von GaN auf SiC (*two-step deposition method*) [70]. Thermodynamisch betrachtet ist die Benetzung (*wetting*) von GaN auf SiC so schlecht, daß die Nukleation vollständig dreidimensional (3D) erfolgt.

Aus wachstumskinetischen Gründen bilden sich durch das Absenken der Substrattemperatur und die Erhöhung des V/III-Verhältnisses kleinere Inseln mit höherer Dichte, an deren Rändern die aufgebaute Verspannung der GaN-Inseln durch Ausbildung von Versetzungen effektiver abgebaut werden kann.<sup>2</sup> Abb. 3.3(a) zeigt das RHEED-Bild nach der Abscheidung von 30 Monolagen (ML) GaN in dem [11 $\bar{2}$ 0]-Azimut. Die punktförmigen Transmissionsanteile (*spots*) im Beugungsbild spiegeln die 3D-Nukleation des GaN wider.

**Nukleation von (Al,Ga)N** Einerseits nimmt für  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  die freie Energie der Adsorbat-Oberfläche mit zunehmendem Al-Gehalt  $x$  ab. Dadurch wird SiC vom  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  besser benetzt – die 2D-Nukleation (Stranski-Krastanov-Wachstum) wird begünstigt. Andererseits erlaubt die höhere Reaktivität des Al mit der dadurch einhergehenden Verkleinerung der Migrationslänge eine sogenannte pseudo-2D-Nukleation.

---

<sup>2</sup>Bei den Betrachtungen ist darauf zu achten, daß kinetische Aspekte, wie z. B. die Reaktivität eines Elementes, von thermodynamischen Aspekten, wie z. B. der Benetzung, zu trennen sind, da beide Einflüsse unabhängig voneinander wirken können.



**Abbildung 3.3:** RHEED-Bilder nach Abscheidung von (a) 30 ML GaN im  $[1\bar{1}20]$ -Azimut und (b) 100 ML GaN im  $[11\bar{2}0]$ -Azimut bzw. (c) im  $[1\bar{1}00]$ -Azimut. Nach Koaleszenz der 3D-Keime erfolgt eine rasche Glättung der Wachstumsfront. Zusätzlich wird eine intensive  $(2 \times 2)$ -Rekonstruktion während des Wachstums beobachtet (durch Pfeile markiert).

In diesem Fall findet die Abscheidung makroskopisch homogen, jedoch mikroskopisch ungeordnet und rauh statt.

Im Extremfall beträgt die Gitterfehlانpassung für das Materialsystem AlN/SiC(0001) nur 1%, so daß AlN kohärent, d. h. vollständig verspannt bis zu einer kritischen Schichtdicke auf dem Substrat abgeschieden werden kann. Obwohl die Gitterfehlانpassung zwischen GaN und dem verspannten AlN gleich groß mit der zwischen GaN und SiC ist, erfolgt das Wachstum von GaN infolge der besseren Benetzung auf AlN vollständig zweidimensional. Die ansteigende Verspannungsenergie wird nach Erreichen der kritischen Schichtdicke graduell durch Ausbildung von Versetzungen abgebaut. Da die GaN-Synthese weit entfernt vom thermodynamischen Gleichgewicht stattfindet, kann die Verspannung infolge kinetischer Barrieren nur teilweise abgebaut werden [71].

**Einfluß der Nukleation auf die Kristalleigenschaften** Im Laufe der Optimierung der GaN-Synthese (ca. 50 Proben) wurden unterschiedlichste Nukleations- und Wachstumsparameter getestet. Die Beobachtung der Wachstumsoberfläche mittels RHEED sowie die *ex situ*-Analyse der Proben mittels Röntgenbeugung (*XRD – x-ray diffraction*), kapazitiven (*CV – capacitance-voltage*) und Hallmessungen, AFM, Ellipsometrie und Messungen der Photolumineszenz (*PL – photoluminescence*) ermöglichte eine detaillierte Beurteilung der Schichtqualität. In Übereinstimmung mit der Literatur [72] zeigte sich hier der entscheidende Einfluß der dünnen Nukleationsschicht auf die Kristallqualität des gesamten GaN- und (Al,Ga)N-Puffers.

Erstaunlicherweise verbessert sich die Halbwertsbreite der GaN-Reflexe in Röntgenmessungen – eine aussagekräftige Meßgröße für die Kristallinität der Pufferschichten (vgl. Kapitel 4.1) – um den Faktor 5–7, wenn auf spezielle Nukleationsparameter ( $550^\circ\text{C} < T_{\text{sub}} < 650^\circ\text{C}$ ,  $0.5 < V/III < 20$ ,  $50 \text{ nm/h} < R_{\text{GaN}} < 100 \text{ nm/h}$ ) verzichtet wird. Anders ausgedrückt, die Kristallinität ist am besten, wenn Nukleation und Wachstum unter denselben Epitaxiebedingungen stattfinden. Die Ursache dafür scheint die höhere Wachstumstemperatur und die dadurch höhere Ga-Diffusion zu sein, die eine geringere Dichte an Wachstumskeimen bedingt. Bei der Koaleszenz werden somit weniger Versetzungen eingebaut. Andererseits reduzieren leicht  $\text{NH}_3$ -reiche Nukleationsbedingungen die Ausbildung von offenen Fadenversetzungen (*open-core*

*threading dislocations*), die dicht benachbart zur Entstehung von sogenannten *plateau-valley*-Morphologien führen können.

### 3.3 Wachstum von GaN und (Al,Ga)N

Nach der Koaleszenz der relaxierten 3D-Keime kann bei Substrattemperaturen von über 650°C und Ga-stabilen Flußverhältnissen die Migrationslänge der Ga-Adatome derart erhöht werden, daß eine schnelle Glättung der Wachstumsfront einsetzt. Im RHEED-Bild wird dieser Übergang durch die Ausbildung von Streifen (*streaks*) wiedergegeben [Abb. 3.3(b) und (c)].

Ist die Wachstumsfront atomar glatt und die mittlere freie Weglänge der Adatome größer als die Terrassenbreite, findet das Wachstum nicht mehr durch Bildung von statistisch verteilten 2D-Keimen statt, sondern durch Anlagerung der Spezies an den Stufenkanten. Dieser Wachstumsmodus wird Stufenfluß (*step flow*) genannt. Der Übergang spielt eine große Rolle bei der Detektion von (Al,Ga)-induzierten Oszillationen des primär reflektierten RHEED-Strahls (*specular spot*).

Während der Optimierungsphase wurde die Substrattemperatur und das V/III-Verhältnis über einen weiten Bereich variiert und durch die resultierenden Kristalleigenschaften sukzessiv optimiert. Eine Datenbank erfaßte alle Analyseergebnisse und ermöglichte so eine quantitative Wertung der Schichteigenschaften und deren Abhängigkeiten untereinander.

Im folgenden werden die kritischen Syntheseparametern *Wachstumstemperatur* und *V/III-Verhältnis* diskutiert, da deren Wahl und Bestimmung neben der Nukleation den größten Einfluß auf die Schichtqualität hat.

#### 3.3.1 Substrattemperatur

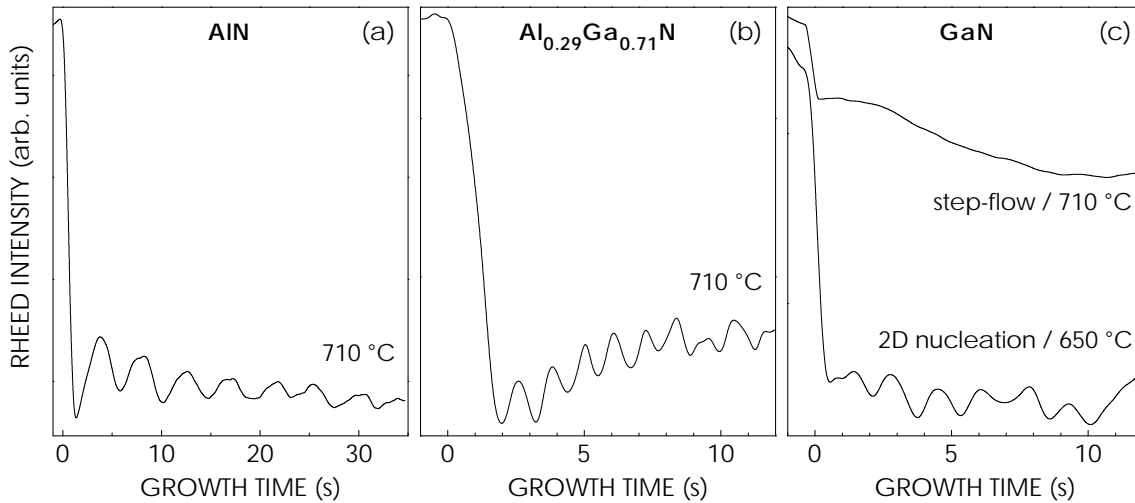
Normalerweise wird die Substrattemperatur durch ein Thermoelement bestimmt, welches sich hinter dem Substrat befindet und die thermische Abstrahlung der Manipulatorheizung mißt. Zur absoluten Temperaturbestimmung wird an Stelle von SiC- ein GaAs-Substrat in gleicher Weise montiert und hochgeheizt. Die mit einem Pyrometer (GaAs-Emissivität 0.67) ermittelte wirkliche Oberflächentemperatur dient der Eichung der Thermoelement-Temperatur. Ein eventueller Offset der Pyrometer-Temperatur wird durch die bei 580°C stattfindende Oxid-Desorption korrigiert.

Das GaN-Wachstum kann in drei Temperaturbereiche unterteilt werden, die nur geringförmig vom V/III-Verhältnis abhängen.

(i)  $T_{sub} < 580^{\circ}\text{C}$  Die kinetisch reduzierte Ga-Migrationslänge behindert eine flächig-kohärente GaN-Kristallisation an der Wachstumsfront. Mit Erreichen der 'epitaktischen Dicke' [73] wird ein Übergang vom 2D- zum polykristallinen Wachstum [74] beobachtet, der im RHEED-Beugungsbild durch konzentrisch angeordnete Ringe erkennbar ist. Ferner macht die thermisch limitierte Aufspaltung des Stickstoff-Precursors  $\text{NH}_3$  die GaN-Synthese unter 500°C nahezu unmöglich [53].

(ii)  $580^{\circ}\text{C} < T_{sub} < 720^{\circ}\text{C}$  In diesem Temperaturbereich kann GaN im 2D-Wachstum abgeschieden werden. Bei Substrattemperaturen ab 650°C wird jedoch die Wachs-





**Abbildung 3.4:** Intensitätsvariation des primär reflektierten RHEED-Strahls während der Synthese von (a) AlN (0.22 ML/s), (b)  $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{N}$  (0.83 ML/s) sowie (c) GaN im lagenweisen Wachstum (0.58 ML/s) und im Stufenfluß-Wachstum.

tumsgeschwindigkeit durch die einsetzende Ga-Desorption herabgesetzt. Bei einer Temperatur von  $710^\circ\text{C}$  beläuft sich der Verlust auf ca. 30% [49]. Durch die bis auf 4% ansteigende Dissoziationswahrscheinlichkeit des  $\text{NH}_3$  muß eine zusätzliche Kopplung zwischen der Wachstumsrate und der Substrattemperatur berücksichtigt werden [53]. Erfolgt die Abscheidung Atomlage für Atomlage, muß die Stufendichte auf der Wachstumsfront zwangsläufig oszillieren. Im RHEED-Bild wird die Änderung dieser Stufendichte durch eine Intensitätsoszillation des Specular Spots wiedergegeben: mit zu- bzw. abnehmender Stufendichte nimmt auch die Intensität des Specular Spots ab bzw. zu [50]. Da die Deposition einer (Al,Ga)N-Monolage mit einer Oszillationsperiode korrespondiert, kann *in situ* die Wachstumsrate von  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  exakt bestimmt werden [Abb. 3.4(a) und (b)]. In Abb. 3.4(c) werden während der GaN-Synthese bei Temperaturen um  $710^\circ\text{C}$  keine RHEED-Oszillationen beobachtet, da die Ga-Migrationslänge ein GaN-Wachstum an Stufenkanten ermöglicht. Die Stufen 'fließen' über die Wachstumsfront, die Stufendichte ändert sich also nicht mit der Zeit. Durch das Absenken der Substrattemperatur auf  $650^\circ\text{C}$  wird die Migration der Ga-Adatome kleiner als der Stufenabstand (ca. 50–200 nm), so daß lagenweises Wachstum unter Bildung von zufällig auftretenden 2D-Nukleationskeimen dominiert [50]. Folglich werden auch Ga-induzierte RHEED-Oszillationen detektiert.

(iii)  $T_{\text{sub}} > 720^\circ\text{C}$  Bei Überschreiten von  $720^\circ\text{C}$  kommt es zu einem abrupten Verschwinden der  $(2 \times 2)$ -Rekonstruktion. Unter metallreichen Wachstumsbedingungen können glatte und geschlossene Schichten bis zu  $740^\circ\text{C}$  erzielt werden [75]. Höhere Temperaturen mußten vermieden werden, um das verstärkte Einsetzen der thermischen Dekomposition von GaN zu unterbinden [76]. Speziell an Fadenversetzungen kann es durch fehlende Bindungspartner und deshalb kleineren Bindungsenergien zum Entstehen von Facetten kommen [77], auf denen die GaN-Wachstumsrate kleiner als entlang der  $\{0001\}$ -Richtungen ist. Dieses thermische Ätzen ist nicht reversibel und führt zu ausgeprägten Plateau-Valley-Morphologien.

### 3.3.2 V/III-Verhältnis

Neben der Substrattemperatur hat die Wahl des V/III-Verhältnisses einen großen Einfluß auf Kristallqualität, Morphologie und Hintergrunddotierung der GaN- und (Al,Ga)N-Puffer. Erst die (vom Mo-Halter und der Substratmontage unabhängige) Bestimmung des V/III-Verhältnisses auf der Wachstumsoberfläche garantiert die Reproduzierbarkeit der GaN-Synthese und ermöglicht so eine sukzessive Optimierung der Kristalleigenschaften.

Zwischen 650°C und 720°C kann durch geeignete Wahl der Anfangsbedingungen eine intensive ( $2\times 2$ )-Rekonstruktion der (Al,Ga)N-Wachstumsfront beobachtet werden [Abb. 3.3(b) und (c)], deren Intensität sehr empfindlich auf Veränderungen des V/III-Verhältnisses reagiert. Um konstante Wachstumsraten zu gewährleisten,<sup>3</sup> wurde bei einem konstanten Fluß der Gruppe-III-Metalle der  $\text{NH}_3$ -Fluß derart justiert, daß die RHEED-Intensität der ( $2\times 2$ )-Rekonstruktion maximal wird.

Nach dem Wachstum wurden die Schichtdicken aus Ellipsometriemessungen ermittelt. Für eine Serie aus GaN-Puffern, die unter konstantem Ga-Fluß mit unterschiedlichen  $\text{NH}_3$ -Flüssen synthetisiert wurden, zeigte sich für kleine  $\text{NH}_3$ -Flüsse ein charakteristisches Abknicken der Wachstumsrate. Bei konstanter Substrattemperatur und konstantem Ga-Fluß markiert diese Grenze zwischen Ga-reichem ( $\text{NH}_3$ -limitiertem) Wachstum und  $\text{NH}_3$ -reichem (Ga-limitiertem) Wachstum das stöchiometrische Wachstum. *Diese Grenze tritt gerade bei dem  $\text{NH}_3$ -Fluß auf, bei dem eine ( $2\times 2$ )-Rekonstruktion maximaler Intensität resultiert, d. h. das Intensitätsmaximum der Rekonstruktion entspricht dem stöchiometrischen Flußverhältnis  $V/III = 1$  auf der Wachstumsfront.*

Bei geringfügig kleineren  $\text{NH}_3$ -Flüssen findet die Synthese  $\text{NH}_3$ -limitiert statt, wodurch die Wachstumsrate abnimmt.<sup>4</sup> Obwohl die Natur dieser Rekonstruktion noch nicht verstanden ist [78], besticht diese einfache Methode durch die Exaktheit des einzustellenden  $\text{NH}_3$ -Flusses ( $\pm 3\%$ ), die Reproduzierbarkeit und die Möglichkeit, auf Wachstumsänderungen schnell reagieren zu können.

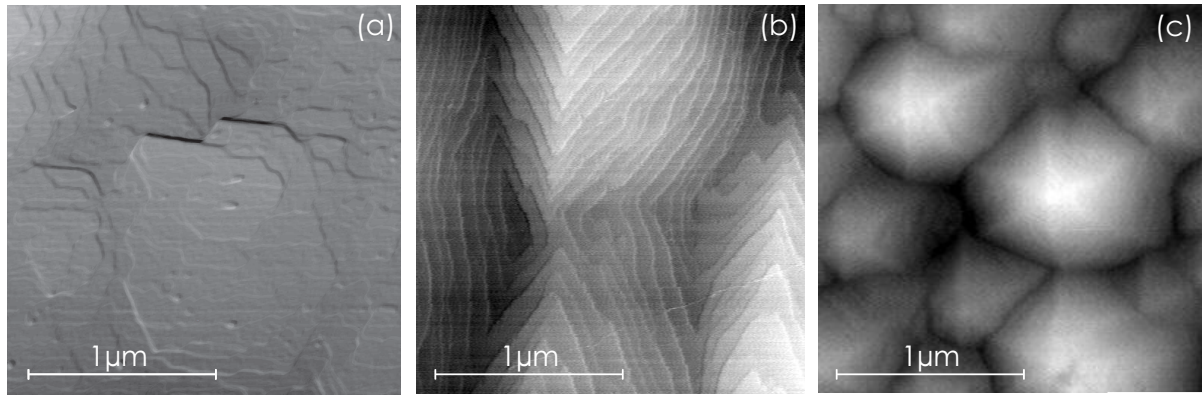
(i)  $V/III > 1$  Für  $\text{NH}_3$ -reiche Bedingungen nimmt die Intensität der ( $2\times 2$ )-Rekonstruktion auf der Wachstumsoberfläche schnell ab, die Deposition verläuft jedoch bis  $V/III = 1$ –5 vollständig zweidimensional. Bei höheren V/III-Verhältnissen wird 3D-Wachstum beobachtet [79], das sich im RHEED-Bild durch einen graduellen Übergang von Streaks zu Spots bemerkbar macht. Die mittels AFM untersuchten GaN-Oberflächen [Abb. 3.5(a)] weisen eine mit dem V/III-Verhältnis ansteigende mittlere Rauigkeit (*rms-roughness*) auf. In gleicher Weise erhöht sich die Mosaizität der GaN-Schicht, die durch Röntgenbeugung (*XRC – x-ray rocking curve*) abgeschätzt wird (siehe Kapitel 4.1).

Die Rolle des V/III-Verhältnisses auf die elektrischen Eigenschaften der Nitridschichten wird noch kontrovers diskutiert [78,80]. Wachstumsunterbrechungen sollten generell vermieden werden, da die entstehenden Grenzflächen höher dotiert werden. In der

---

<sup>3</sup>Alle Puffer wurden mit einer Wachstumsrate von 500–700 nm/h hergestellt.

<sup>4</sup>Bei einer Wachstumsrate von 500 nm/h diente der Hintergrundsdruck der Wachstumskammer von  $7\times 10^{-6}$  Torr als Orientierung für stöchiometrisches GaN-Wachstum. Durch die  $\text{NH}_3$ -Kondensation am  $\text{LN}_2$ -Zellenshroud muß der Fluß des Precursors mit zunehmender Wachstumszeit leicht nachreguliert werden.



**Abbildung 3.5:** AFM-Bilder der Oberflächenmorphologien von GaN-Puffern, die (a)  $\text{NH}_3$ -stabil ( $V/\text{III} = 2.3$ ), (b) stöchiometrisch ( $V/\text{III} = 1.0$ ) und (c) Ga-stabil ( $V/\text{III} = 0.6$ ) abgeschieden wurden. Man beachte die mono- und multiatomaren 2H-Stufen ( $n \times 5.18 \text{ \AA}$ ) in (a) und (b). Die totale Höhe (*peak-to-valley roughness*) der AFM-Abbildungen beträgt (a) 6 nm, (b) 8 nm und (c) 15 nm.

vorliegenden Arbeit wurde für  $\text{NH}_3$ -stabile Bedingungen in CV- und Hall-Messungen ein deutlicher Anstieg der  $n$ -Hintergrundsdotierung festgestellt. Ursache dafür scheint der erhöhte Einbau von Sauerstoff zu sein, der sich in Form von Wasserdampf als Restverunreinigung in  $\text{NH}_3$  befindet [81].

(ii)  $V/\text{III} < 1$  Ga-stabile Wachstumsbedingungen führen zu einer Abnahme der Depositionsrate, da das (Al,Ga)N-Wachstum durch die Verfügbarkeit des aktivierten  $\text{NH}_3$ -Precursors kontrolliert wird [51]. An der Wachstumsfront bildet sich ein Überschuß an Gruppe-III-Metallen und bewirkt eine erhöhte Oberflächendiffusion der Ga-Adatome [59]. Ferner tragen Ga-stabile Bedingungen zum Clustern von Ga-Adatomen an Kristallinhomogenitäten, wie z. B. Fadenversetzungen, bei. Im speziellen führt der GaN-Stufenfluß um Schraubenversetzungen (Spiralwachstum) zur Ausbildung von mikrometergroßen Pyramiden [Abb. 3.5(c)], die einen ausgeprägt hexagonalen Charakter haben [82].

Der im Vergleich zur plasma-unterstützten MBE höhere Anteil an Schraubenversetzungen [83] bewirkt die Ausbildung von hexagonalen Pyramiden. Die Oberflächendichte dieser Pyramiden kann somit zur Abschätzung der Dichte dieses Versetzungstyps genutzt werden ( $n_{\text{disl}} \sim 1 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ) [72]. Hierbei nimmt die Höhe der Pyramiden offenbar mit dem Ga-Überschuß zu. GaN-Schichten, die unter diesen Bedingungen synthetisiert wurden, haben eine konstante Hintergrunddotierung von  $n_{\text{CV}} = 1\text{--}5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

(iii)  $V/\text{III} = 1$  Zweifelsfrei zeigen GaN-Schichten, die unter stöchiometrischen bzw. leicht Ga-stabilen Wachstumsbedingungen hergestellt werden, bei allen Kristalleigenschaften die besten Ergebnisse [Abb. 3.5(b)]. Die sorgfältige Einstellung des  $\text{NH}_3$ -Flusses garantiert so GaN-Schichten hoher Qualität. Im Mittel wird eine C-V-Schichtdotierung von  $n \sim 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  erzielt. Die Eigenschaften der Nitridschichten, die unter diesen Bedingungen mit Hilfe der RMBE synthetisiert wurden, werden im folgenden Kapitel vorgestellt und mit anderen Herstellungsmethoden verglichen.

Zusammenfassend konnten GaN- und (Al,Ga)N-Schichten mit den besten Eigenschaften unter Beachtung folgender Präparationsschritte und Prozeßbedingungen hergestellt werden:

Schritt 1	Thermo-Chemisches Ätzen der SiC-Substrate
Schritt 2	Oberflächenreinigung mittels Ga-Deposition und -Desorption
Schritt 3	identische Bedingungen für Nukleation und Wachstum: $T_{real} = 710^{\circ}\text{C}$ , $R_{\text{AlGaN}} = 500\text{--}700 \text{ nm/h}$ , $V/\text{III} \approx 1$

## 4 Charakterisierung der GaN-Pufferschichten

In diesem Kapitel werden die Eigenschaften von GaN-Schichten, die auf SiC(0001)-Substraten abgeschieden wurden, vorgestellt und diskutiert. Diese 1–2  $\mu\text{m}$  dicken Epitaxie-Schichten dienen als Puffer für die nachfolgende Synthese von GaN/(Al,Ga)N-Vielschichtstrukturen. Die Herstellung von anwendungsbezogenen Heterostrukturen setzt GaN- und (Al,Ga)N-Puffer mit hoher morphologischer *und* struktureller Qualität voraus, um atomar glatte Grenzflächen und geringe Versetzungsdichten realisieren zu können. Gleichzeitig muß die Hintergrunddotierung über einen weiten Bereich kontrolliert werden können, um die gewünschten optischen und elektrischen Eigenschaften der Heterostrukturen zu gewährleisten.

Nachdem die GaN-Morphologie bereits im vorherigen Kapitel untersucht wurde, widmet sich dieses Kapitel den strukturellen, optischen und elektrischen Eigenschaften von GaN-Pufferschichten.

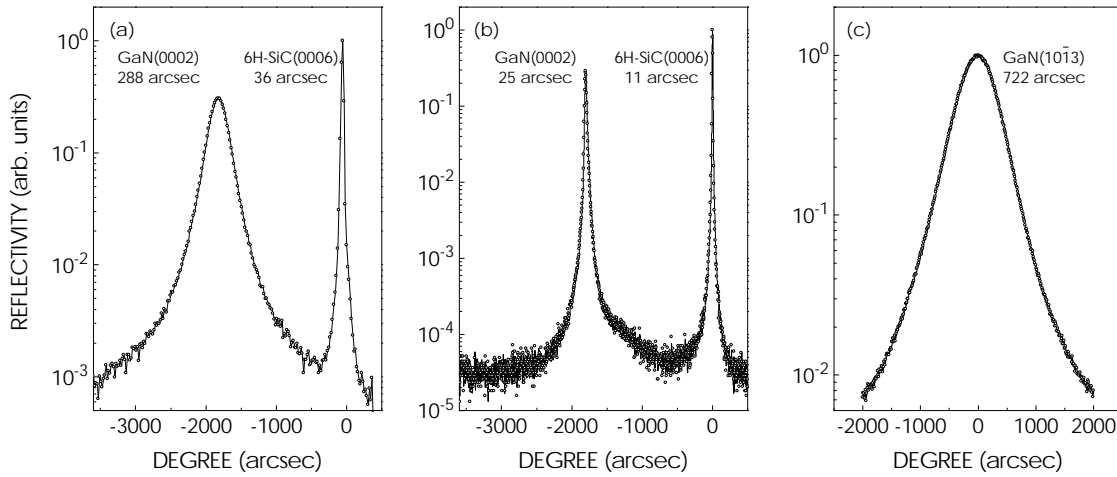
### 4.1 Strukturelle Eigenschaften

**Polarität** Gruppe-III-Nitride besitzen aufgrund ihrer Wurtzit-Struktur eine singuläre polare Achse (vgl. Kapitel 5). Normalerweise [6] verläuft diese Achse parallel zur Wachstumsrichtung, d. h., es wird *c-plane* GaN synthetisiert. Die fehlende Inversionssymmetrie bedingt jedoch zwei mögliche Polaritäten entlang der *c*-Achse von (Al,Ga,In)N: Ga-orientierte (*Ga-face*) bzw. (0001)-Polarität oder N-orientierte (*N-face*) bzw. (000 $\bar{1}$ )-Polarität. Die Gruppe-III-Nitride unterscheiden sich somit stark von III-V-Halbleitern, wie z. B. GaAs, die bei (001)-Wachstumsorientierung unpolar sind.

In den letzten Jahren wurde diese spezifische Eigenschaft theoretisch [84,85,86,87] und experimentell [88,89,90] intensiv untersucht. Da die polare Orientierung der Nitride großen Einfluß auf die optischen und elektrischen Eigenschaften von Heterostrukturen, wie z. B. Vielfachquantenwell-Strukturen und Transistoren haben, muß die Polarität bestimmt werden. Hierfür wurden Röntgen-Photoemissionsspektroskopie [91], Auger-Elektronenspektroskopie [92], TEM [93], Ionenstrahltechniken [94], chemische Ätzversuche [95] und Untersuchungen zur Oberflächenrekonstruktion [96] genutzt.

In der vorliegenden Arbeit wurden chemische Ätzversuche an den GaN-Puffern durchgeführt. Die chemische Bestimmung der Polarität basiert auf der Tatsache, wonach GaN(000 $\bar{1}$ ) chemisch weniger stabil als GaN(0001) ist. Es konnte nachgewiesen werden, daß die N-face GaN(000 $\bar{1}$ )-Oberfläche in KOH- und NaOH-Lösungen – speziell an Defekten – angeätzt wird, dagegen nicht Ga-face GaN(0001)-Oberflächen [97]. In Anlehnung an Hellman *et al.* [90] wurde die GaN-Morphologie mit einem Sekundärelektronenmikroskop (SEM) aufgezeichnet und markiert, danach in 1.8 M NaOH bei 50°C für 10 min 'geätzt' und schließlich wiederum mit dem SEM untersucht. Es zeigte sich jedoch keine Veränderung in den GaN-Morphologie, woraus auf die (0001)-Polarität der RMBE-Schichten auf SiC(0001) geschlossen werden konnte.

**Röntgenbeugung** Die Röntgendiffraktometrie wurde genutzt, um die integrale Kristallqualität und die strukturellen Parameter, wie z. B. Schichtdicke, Verspannung und Zusammensetzung, der epitaktisch hergestellten Schichtstrukturen präzise zu bestimmen. Hierbei wird monochromatische Röntgenstrahlung der Wellenlänge  $\lambda$ , die in



**Abbildung 4.1:** (a) Typisches XRC-Profil und (b) hochauflösendes  $\omega$ - $2\theta$ -Profil der GaN(0002)- und SiC(0006)-Reflexe eines 1  $\mu\text{m}$  dicken GaN-Puffers. (c) Asymmetrisches  $\omega$ -Profil des (10 $\bar{1}$ 3)-Reflexes derselben Struktur.

einem Winkel  $\omega$  auf eine Schar paralleler Netzebenen des Abstandes  $d$  auftrifft, bei Erfüllung der Bragg'schen Gleichung  $nd = 2d \sin \theta_B$  an der Probe gebeugt. Durch Variation des Probenwinkels  $\omega$  werden nacheinander die Bragg-Bedingungen für das Substrat und die Epitaxie-Schicht erfüllt, so daß die jeweiligen Bragg-Reflexe mit Hilfe eines Röntgendetektors nachgewiesen werden können.

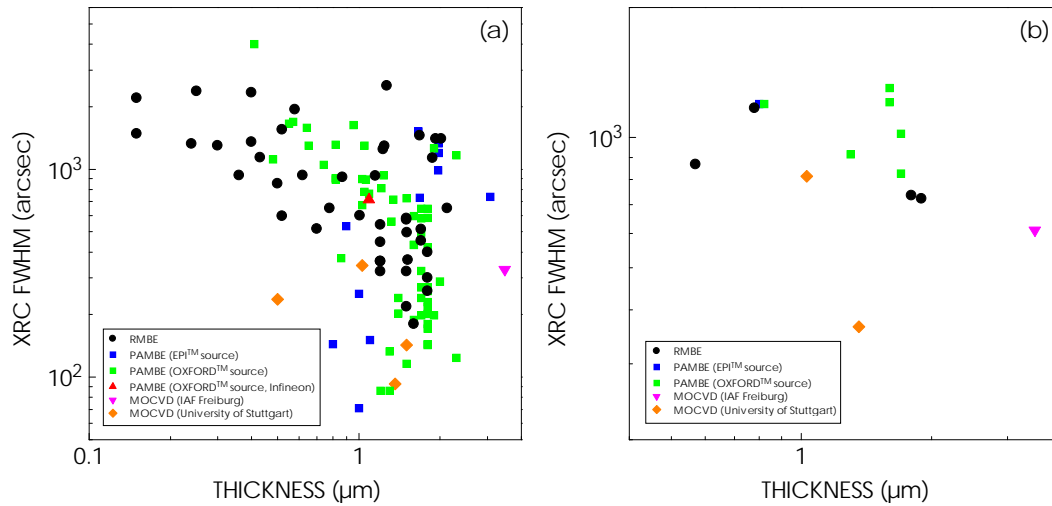
Symmetrische Rocking-Kurven des GaN(0002)-Reflexes<sup>1</sup> wurden mit einem Doppelkristall-Röntgendiffraktometer gemessen, dessen instrumentelle Verbreiterung 20 arcsec beträgt. Symmetrische  $\omega$ - $2\theta$ -Profile und asymmetrische  $\omega$ -Profile wurden mit einem BEDE D3 Drei-Achsen-Diffraktometer gemessen, das mit einem Ge(022)-Monochromator und einem Si(111)-Analysator ausgestattet ist (instrumentelle Verbreiterung 11 arcsec). Für alle Messungen wurde die  $\text{Cu}_{K\alpha_1}$ -Röntgenstrahlung einer 40 keV-Anode genutzt.

Ein wichtiges qualitatives Maß für die Kristallqualität von Einzel- und Mehrschicht-Strukturen ist die Halbwertsbreite (*FWHM – full width at half maximum*) der Röntgen-Reflexe. Die mit XRC gemessene Mosaizität des GaN(0002)-Reflexes [98] ergibt unter optimierten Synthesebedingungen standardmäßig Halbwertsbreiten von 300 arcsec [Abb. 4.1(a)]. In symmetrischen  $\omega$ - $2\theta$ -Profilen wird dagegen nur die Variation der  $c$ -Gitterkonstante gemessen. Sie beträgt typischerweise 25 arcsec [Abb. 4.1(b)] und liegt damit nur geringfügig über der theoretisch erreichbaren Breite von 17 arcsec. Abbildung 4.1(c) zeigt das asymmetrische  $\omega$ -Profil eines GaN-Puffers im (10 $\bar{1}$ 3)-Reflex. Die Messung dieses Reflexes erfordert eine Verkipfung der Probe senkrecht zur Ebene des einfallenden Röntgenstrahls, wodurch die Detektion des SiC-Reflexes unterbunden wird.

Um einen Vergleich zu anderen Synthesemethoden zu ermöglichen, sind in Abbildung 4.2 die Halbwertsbreiten der symmetrischen (0002)- und asymmetrischen (10 $\bar{1}$ 3)-Reflexe aller untersuchten GaN-Puffer zusammengefaßt. Die im Vergleich zur MOCVD vergleichbare Kristallqualität der RMBE-Schichten und PAMBE-Schichten

<sup>1</sup>bei weit geöffnetem Detektor und festem Detektorwinkel  $\theta$  an der Bragg-Winkelposition des SiC(0001)-Substrates





**Abbildung 4.2:** (a) XRC-Halbwertsbreite der symmetrischen (0002)-Reflexe von GaN-Puffern als Funktion der Schichtdicke (Kreise). (b) Halbwertsbreite der asymmetrischen (10 $\bar{1}$ 3)-Reflexe von GaN-Puffern im  $\omega$ -Profil als Funktion der Schichtdicke (Kreise). Zum Vergleich wurden auch Halbwertsbreiten von GaN-Puffern aufgetragen, die mit anderen Herstellungsmethoden synthetisiert wurden. Die Meßergebnisse wurden nicht nach der Kristallinität selektiert.

(Kreise bzw. Quadrate in Abb. 4.2) sind das Resultat der in Kapitel 3.1 und 3.2 beschriebenen Substratpräparation und Synthesebedingungen.<sup>2</sup> Die vergleichbaren Kristallqualitäten weisen darauf hin, daß eine optimale Synthese der RMBE-Schichten erreicht wurde.

Im Vergleich zu anderen III–V-Materialsystemen haben *state of the art*-Nitrid-Strukturen eine hohe Dichte an strukturellen Defekten, die zu säulenartigem Wachstum führt. Hohe Versetzungsdichten und Mosaizitäten – ausgedrückt durch die Verkipfung und Verdrehung der Säulen – sind typische Eigenschaften von heteroepitaktisch hergestellten Gruppe-III-Nitriden. Es ist bekannt, daß solche Epitaxie-Schichten Versetzungsdichten bis zu  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  aufweisen. So konnte gezeigt werden, daß die Analyse der symmetrischen und asymmetrischen Röntgenprofile detaillierte Aussagen über unterschiedliche Typen von Versetzungen, inhomogene Verspannungen und den Grad der Mosaizität machen kann, die die strukturelle Qualität der Epitaxie-Schichten bestimmt [99, 100].

Fadenversetzungen können mit stufenartigem (*edge type threading dislocation*), schraubenartigem (*screw type threading dislocation*) und gemischtem (*mixed threading dislocation*) Charakter auftreten [101].<sup>3</sup> Die Versetzungen verlaufen entlang der [0001]-Gleitebenen, d. h. normal zur Basalebene. Normalerweise dominieren in Nitrid-Schichten stufenartige Fadenversetzungen.

<sup>2</sup>GaN-Schichten, deren Substrate vor dem Wachstum nicht H<sup>+</sup>-geätzt und *in situ* gereinigt wurden, haben typischerweise Halbwertsbreiten um 1000 arcsec.

<sup>3</sup>Unter einer Versetzungslinie versteht man allgemein die Grenzlinie zwischen einem ungestörten und gestörten Kristallbereich. Exakt kann eine Versetzung durch den Umlauf nach Burgers beschrieben werden, indem man die Versetzungslinie in einer zu ihr senkrecht liegenden Ebene umfährt. Per Definition verläuft der Burgers-Vektor bei einer Stufenversetzung senkrecht zur Versetzungslinie – der korrespondierende Burgers-Vektor ist  $\mathbf{b} = \frac{1}{3} \langle 1120 \rangle$ . Bei Schraubenversetzungen hingegen verläuft der Burgers-Vektor  $\mathbf{b} = [0001]$  parallel zur Versetzungslinie. Gemischte Fadenversetzungen haben den Burgers-Vektor  $\mathbf{b} = \frac{1}{3} \langle 11\bar{2}3 \rangle$ .

Epitaxie-Schichten geringer Qualität (Mosaikkristalle) haben säulenartigen Charakter, an deren Grenzen (*grain boundaries*) verstärkt Fadenversetzungen auftreten [102]. Während Stufenversetzungen eine Verdrehung (*twist*) der Säulen erzeugen, verursachen Schraubenversetzungen eine Verkipfung (*tilt*). Hier korrelieren die Breiten der Röntgenreflexe lediglich mit dem (diskreten) Twist und Tilt der einzelnen Säulen.

Bei Schichten hoher struktureller Qualität dagegen werden die Röntgenreflexe durch die elastische Verzerrung des Kristallgitters in der Umgebung der statistisch verteilten Fadenversetzungen verbreitet, d. h., die Breite der Röntgenreflexe kann als relatives Maß für den Twist und Tilt der Epitaxie-Schicht herangezogen werden [99]. Mit dem Ansteigen der Versetzungsdichte nimmt somit auch die Halbwertsbreite der Röntgenreflexe zu.

Symmetrische Röntgenreflexe verbreitern ausschließlich und vollständig durch den Tilt einer Epitaxie-Schicht. Dagegen wird die Breite der asymmetrischen Röntgenreflexe durch die Projektion vom tatsächlichen Twist *und* Tilt bestimmt [16]. Diese bedeutet, daß die Verbreiterung der asymmetrischen Reflexe sowohl von Stufenversetzungen als auch Schraubenversetzungen herrührt [101]. Anders ausgedrückt, die Breite der asymmetrischen Röntgenreflexe ist ein relatives Maß<sup>4</sup> für die totale Dichte an Fadenversetzungen [103]. Betrachtet man die in Abb. 4.2(b) aufgetragenen Breiten der (10 $\bar{1}$ 3)-Reflexe, muß die totale Dichte an Fadenversetzungen in den RMBE-Schichten mit denen der MOCVD- und besten PAMBE-Schichten vergleichbar sein.

In Übereinstimmung mit den in Abb. 3.5 gezeigten AFM-Morphologien haben RMBE-Schichten im Vergleich zu PAMBE-Schichten einen höheren Anteil von schraubenartigen und gemischten Fadenversetzungen. Solche Versetzungen tragen in symmetrischen Rocking-Profilen zur Verbreiterung der Reflexe bei [Abb. 4.1(b)]. Diese Tatsache würde somit die etwas breiteren (0002)-Reflexe für RMBE-Schichten gegenüber den PAMBE- und MOCVD-Schichten erklären. Das Verhältnis der symmetrischen und asymmetrischen Halbwertsbreiten  $\Delta^{(0002)}/\Delta^{(10\bar{1}3)}$  liegt bei PAMBE-Schichten typischerweise bei  $80/800 = 0.1$ , bei RMBE-Schichten hingegen bei  $300/700 = 0.43$ . Der Vergleich läßt auf einen bis zu zehn mal höheren Anteil von schraubenartigen und gemischten Fadenversetzungen an der totalen Dichte der Fadenversetzungen schließen.

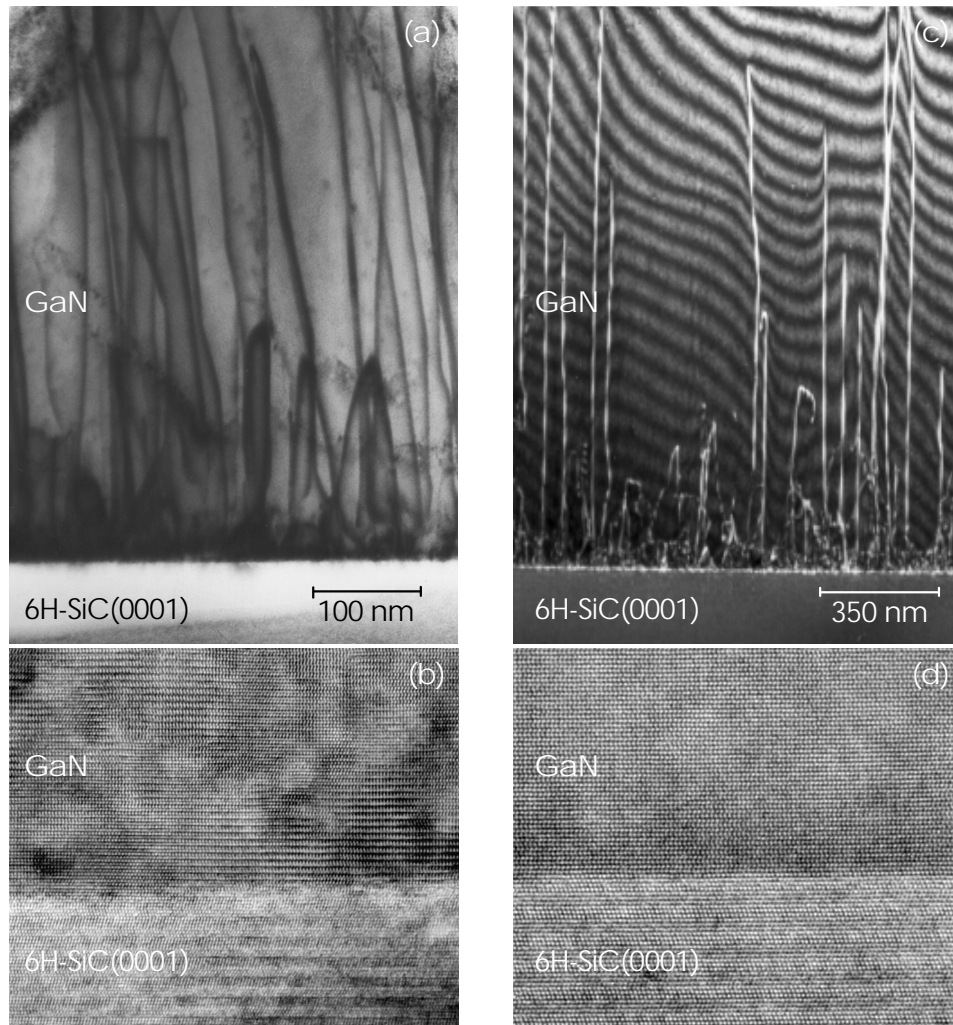
**Elektronenmikroskopie** Das Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM) eignet sich aufgrund seiner hoher Punktauflösung von maximal 1.6 Å zur direkten Gitterabbildung von Halbleitern. Insbesondere liefert diese Methode lokale Informationen über die Kristallstruktur und ist damit komplementär zu den integral arbeitenden Röntgentechniken. In der vorliegenden Arbeit wurde ein JEOL 4000EX Mikroskop bei 400 kV genutzt, um die Kristallqualität anhand der Versetzungsdichte und der Heterogrenzflächen bewerten zu können.

Abbildung 4.3 zeigt die TEM-Querschnittsaufnahmen von GaN-Puffern, die (a) auf ungeätzttem 6H-SiC(0001) ohne vorherige *in situ*-Substratreinigung und (c) unter optimierten Herstellungsbedingungen abgeschieden wurden. Innerhalb der ersten Monolagen wird die Spannungsenergie der Epitaxie-Schicht durch Einbau von Versetzungen abgebaut. Während die oberflächennahe Dichte an Fadenversetzungen  $3\text{--}6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  in (a) beträgt, nimmt sie in (c) für optimal synthetisiertes GaN um einen Faktor 10

---

<sup>4</sup>in nullter Näherung:  $n_{\text{disl}} \sim \Delta_{\text{FWHM}}^2$





**Abbildung 4.3:** TEM-Bilder zweier GaN-Puffer im Querschnitt. (a) Hellfeldkontrast von GaN, das auf einem *as received*-6H-SiC(0001)-Substrat abgeschieden wurde. (c) Dunkelfeldkontrast von GaN, das auf H\*-geätzt und *in situ*-gereinigtem 6H-SiC(0001) synthetisiert wurde. Die korrespondierenden HRTEM-Bilder (b) und (d) zeigen die Epitaxie-Schicht/Substrat-Grenzflächen in atomarer Auflösung.

auf  $3\text{--}5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  ab. Diese erstaunlich geringe Versetzungsdichte ist das Resultat der verbesserten Substratkonditionierung und Wachstumsoptimierung, aber auch ein Synthesespezifikum der RMBE.<sup>5</sup> GaN-Puffer, die mittels PAMBE auf SiC(0001)-Substraten hergestellt werden, besitzen bis zu 10mal höhere Versetzungsdichten [103].

Die korrespondierenden Grenzflächen zwischen Epitaxie-Schicht und Substrat sind in Abb. 4.3(b) und (d) dargestellt. Die hochauflösenden TEM-Ausschnitte (HR-TEM) zeigen für optimale Herstellungsbedingungen eine deutliche Abnahme von Grenzflächenrauhigkeit und planaren Defekten, wie z. B. Stapelfehlern und Domänengrenzen. Ferner wird die effektive Entfernung der politurbedingten polykristallinen SiC-Oberflächenschicht, wie in Abb. 4.3(d) sichtbar, bestätigt. Die hexagonale 6-lagige Gitterperiode – A – B – C – c – b – a – A – des atomar glatten Substrates ist ebenfalls in Abb. 4.3(d) klar zu erkennen.

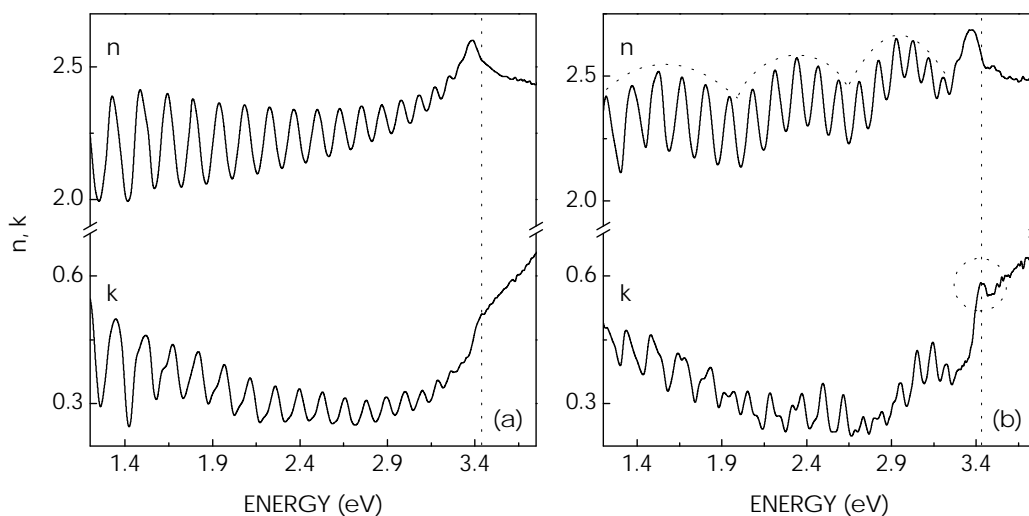
<sup>5</sup>Die RMBE ist damit für versetzungssensitive Anwendungen, wie z. B. Feldeffekt-Transistoren, prädestiniert.

Erstaunlicherweise nimmt die Versetzungsdichte mit zunehmender Schichtdicke stetig ab. Diese Beobachtung steht im Widerspruch zu der Vorhersage, daß sich vertikal verlaufende Fadenversetzungen in hexagonalen (idealen) Kristallen im Energieminimum befinden. Sie sollten demnach unbeeinflußbar bis zur Oberfläche laufen. Tatsächlich jedoch kann ein Abknicken von z. B. zwei Fadenversetzungen in die Basalebene und ihre Annihilation durch Bildung von Halbschleifen (*half loops*) vermutet werden [104]. Die Ursache dafür konnte bisher nicht bestimmt werden, möglicherweise spielt die hohe Ga-Migrationslänge und der Wasserstoff auf der Wachstumsfront eine positive Rolle bei der 'Kommunikation' der Fadenversetzungen untereinander, die energetisch günstigere Zustände ermöglichen. Desweiteren kann spekuliert werden, daß bei realen Oberflächen und biaxialen Restverspannungen die Scherkräfte von Oberflächenstufen, die an und durch schraubenartige Fadenversetzungen erst generiert werden, ein Abknicken dieser begünstigen sollten.

## 4.2 Optische Eigenschaften

Der folgende Abschnitt stellt typische Absorptions-, Reflexions- und Emissionseigenschaften von dicken GaN- und (Al,Ga)N-Schichten vor, die mittels Ellipsometrie und Photolumineszenz untersucht wurden.

**Ellipsometrie** Zur Bestimmung der Schichtdicken von GaN- und (Al,Ga)N-Puffern wurde der Effekt der Interferenz an dünnen Schichten genutzt. Ein Teil des einfallenden Strahls einer Lichtquelle wird an der Grenzfläche zwischen Schicht und dem umgebendem Medium reflektiert, während der andere Teil in die Schicht eindringt. Durch die teilweise Rückreflektion an der Grenzfläche zwischen Puffer und Substrat kommt es zu Mehrfachreflektionen innerhalb der dünnen Schicht. Die vielfach reflek-



**Abbildung 4.4:** (a) Ellipsometriespektrum eines 1.85  $\mu\text{m}$  dicken GaN-Puffers, der auf 6H-SiC(0001) abgeschieden wurde. (b) Ellipsometriespektrum einer (1.55  $\mu\text{m}$ ) GaN/ (300 nm) Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>N/ Si-4H-SiC(0001) Struktur. In beiden Spektren sind die dickenabhängigen Oszillationen des Pseudo-Brechungsindex  $n$  klar zu erkennen. Man beachte das Absorptionsmaximum bei der Energie der freien Exzitonen in (b).

tierten Strahlen interferieren, wobei es in Abhängigkeit von dem Gangunterschied zur konstruktiven Interferenz kommen kann. Das Intensitätsmaximum des austretenden Strahls  $2d\sqrt{n_{rel}^2 - \sin^2\theta} = (m + 1/2)\lambda$  wird genutzt, um die Schichtdicke  $d$  zu bestimmen. Hierbei gibt  $n_{rel}$  die energieabhängige Brechzahl der Schicht,  $m$  die Interferenzordnung,  $\theta$  den Einfallswinkel und  $\lambda$  die Wellenlänge des einfallenden Strahls an. Zur Messung wurde ein SOPRA-Ellipsometer im Winkel von  $\theta = 70^\circ$  genutzt, dessen Energiebereich 1.2–4.7 eV abdeckte. In Abbildung 4.4(a) wird das typische Ellipsometriespektrum eines GaN-Puffers auf 6H-SiC(0001) gezeigt. Die Periode des Pseudo-Brechungsindex entspricht einer Pufferdicke von 1.85  $\mu\text{m}$ . Nahe der Bandkante von 3.4 eV steigt der Brechungsindex  $n$  deutlich an. Die maximale Höhe von  $n$  kann als empirisches Maß für die GaN-Oberflächenrauigkeit genutzt werden. Hingegen gibt die Amplitude der Interferenzen von  $n$  über die Schichtdickenhomogenität Auskunft. Da sich die Brechungsindizes von GaN und (Al,Ga)N-Puffern unterscheiden, kommt es in Abb. 4.4(b) für den 1.55  $\mu\text{m}$  dicken GaN-Puffer, der auf einem 300 nm dickem  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ -Puffer abgeschieden wurde, zu einer zusätzlichen Modulation von  $n$  und  $k$ . Aufgrund der geringen Hintergrunddotierung von  $n < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  kann ein exzitonisches Absorptionsmaximum bei 3.425 eV nahe der GaN-Bandkante detektiert werden. Bei einer Exziton-Bindungsenergie von 26 meV [105] beträgt die GaN-Bandkante somit 3.45 eV. Monemar *et al.* bestimmten die Bandkante von unverspanntem GaN zu 3.46 eV bei Raumtemperatur [106]. Für die leicht tensil verspannten GaN-Schichten wird somit bestätigt, daß es sich hier um die Absorption eines freien 3D-Exzitons handelt.

**Photolumineszenz** Eine der wichtigsten optischen Charakterisierungsmethoden, die die Analyse von Verspannungen, Verunreinigungen und Defekten in dünnen Schichten ermöglicht, ist die Messung der Photolumineszenz [107].

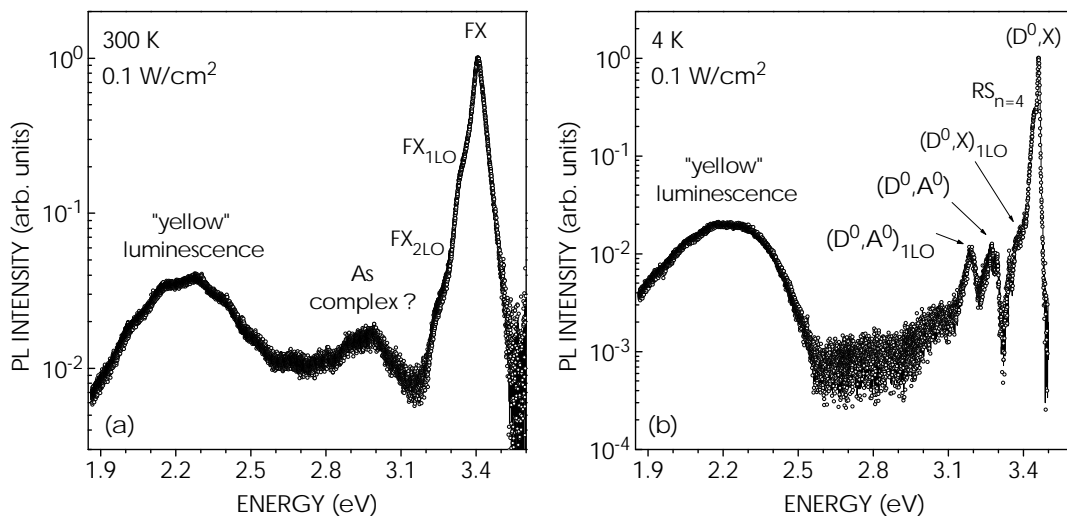
In der vorliegenden Arbeit wurde die zeitintegrierte PL der GaN-Schichten mit der 325 nm-Linie eines 50-mW He-Cd-Lasers angeregt. Für temperaturabhängige PL-Messungen wurde die Probe auf einen Kaltfinger geklebt, in einem Kryostaten mit flüssigem Helium auf 4 K abgekühlt und bei Bedarf gegengeheizt. Die Lumineszenz aus der angeregten Probenfläche, dessen Durchmesser ca. 50  $\mu\text{m}$  betrug, wird über Linsen in einen 1-m Einfach-Gittermonochromator (JOBIN IVON THR1000) fokussiert, spektral zerlegt und mit einer CCD-Kamera detektiert. Die Systemauflösung wird hierbei durch die Fokusslänge des Monochromators und die Spaltbreite festgelegt (energetische Auflösung ca. 100  $\mu\text{eV}$ ).

Exzitonische Übergänge in den Absorptions- und Emissionsspektren von dünnen Epitaxie-Schichten sind ein Indikator für die Kristallqualität [108]. Ist die Dichte an intrinsischen und extrinsischen Defekten in den Puffer-Strukturen kleiner als  $1\text{--}2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , kommt es durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den photogenerierten Elektronen und Löchern zur Bildung von Exzitonen. Für Nitride sind die Bindungsenergien von 3D-Exzitonen mit  $\text{Ry}(\text{GaN}) \approx 26 \text{ meV}$  und z. B.  $\text{Ry}(\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}) \approx 30 \text{ meV}$  so groß [105], daß exzitonische Übergänge selbst bei Raumtemperatur beobachtet werden können. Bei tiefen Temperaturen lokalisieren die freien Exzitonen an Donatoren, Akzeptoren und anderen Kristalldefekten. Strahlende Übergänge sind auch zwischen Donator- und Akzeptorzuständen und deren Kombination mit Phononen möglich.

Die Rekombination von photogenerierten Elektron-Loch-Paaren kann auch unter Emission von  $n$  Phononen der Energie  $\hbar\omega$  ablaufen, wobei die Emissionsenergie um  $n\hbar\Omega$  abnimmt. Im GaN werden sogenannte LO-Phonon-Repliken beobachtet, da deren Energie  $\hbar\omega = 91.4$  meV keiner Dispersion unterliegt [109]. Die Intensität der Repliken nimmt mit der Temperatur zu.

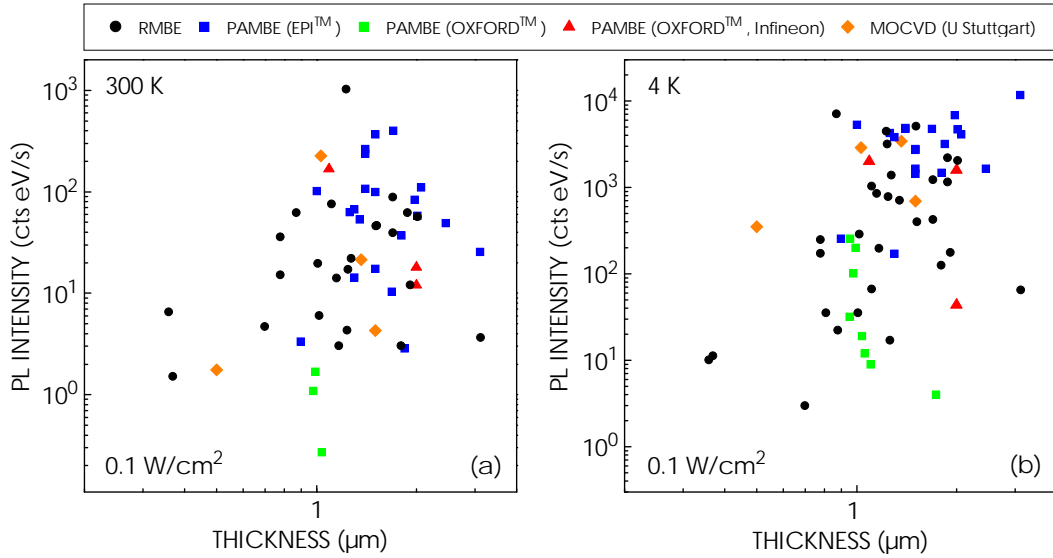
Speziell für ternäre Materialien können mit Hilfe der PL auch die legierungsabhängigen Bandlücken von Halbleitern bestimmt werden [110]. Für  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  kann die Bandlücke über die empirische Beziehung  $E_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}} = xE_{\text{GaN}} + (1-x)E_{\text{AlN}} - bx(1-x)$ , die auf das Van Vechten-Bergstresser-Modell [111] zurückgeht, bestimmt werden, so daß PL-Messungen auch den Al-Gehalt liefern. Dieser setzt die Kenntnis der Bandlücken  $E_{\text{GaN}}$ ,  $E_{\text{AlN}}$  und des sogenannten *bowing*-Parameters  $b$  voraus (vgl. Kapitel 5).

**Diskussion** In Abbildung 4.5 werden die typischen PL-Spektren eines  $1.5\ \mu\text{m}$  dicken GaN-Puffers bei 4 K und 300 K gezeigt. Bei Raumtemperatur [Abb. 4.5(a)] dominiert die Rekombination des freien A-Exzitons ( $\text{FX}_A$ ) bei 3.4 eV. Aus der Emissionsbreite kann die Hintergrunddotierung des Puffers abgeschätzt werden [112]. In Übereinstimmung mit C-V- und Hall-Messungen korrespondiert hier die FWHM-Breite von 45 meV mit einer Hintergrunddotierung von  $N_D - N_A = 1-3 \times 10^{17}\ \text{cm}^{-3}$ . Die Natur der 'gelben' Lumineszenz um 2.2 eV kann durch die strahlende Rekombination von Elektronen aus flachen Donatoren oder dem Leitungsband in tiefe akzeptorartige Zustände beschrieben werden [113, 114]. Die tiefen Akzeptoren werden mit Ga-Vakanzen ( $V_{\text{Ga}}$ ) assoziiert, die bevorzugt an Kristalldefekten wie z. B. Fadenversetzungen entstehen bzw. in deren Umgebung verstärkt auftreten [115]. Ortsaufgelöste Kathodolumineszenz-Messungen belegen eine verstärkte Intensität der 'gelben' Lumineszenz um Fadenversetzungen [116]. Es kann spekuliert werden, daß die Dehnung bzw. Stauchung des Gitters in der Umgebung dieser Fadenversetzungen eine anziehende Wirkung auf Ga-Vakanzen und andere Defekte hat (Cottrell-Atmosphäre [117]) [118, 119].



**Abbildung 4.5:** PL-Spektrum eines nominell undotierten GaN-Puffers bei (a) 300 K und (b) 4 K und niedriger Anregungsdichte. Die Dicke der auf 6H-SiC(0001) abgeschiedenen Epitaxie-Schicht beträgt  $1.6\ \mu\text{m}$ .





**Abbildung 4.6:** Totale PL-Intensität bei (a) 300 K und bei (b) 4 K als Funktion der GaN-Schichtdicke. Alle Puffer wurden unter identischen Versuchsbedingungen untersucht.

Generell wird das Verhältnis zwischen Interband- und Defekt-Lumineszenz als empirisches Maß für die Kristallqualität herangezogen. In Abb. 4.5 liegt der Faktor bei ca.  $10^2$ . Bei höheren Anregungsdichten (bis  $100 \text{ W/cm}^2$ ) werden die Defektzustände abgesättigt, und der Faktor liegt dann bei  $10^3$ – $10^4$ .

Neben der Rekombination von freien Exzitonen wurde bei Raumtemperatur eine breite Emission um 2.9 eV detektiert [Abb. 4.5(a)]. Vermutlich verursacht die ungewollte As-Dotierung von  $1\text{--}5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  die Bildung eines Komplexes, der aus tiefen As-Störstellen und flachen Donatoren besteht [78]. Neuere Berechnungen weisen darauf hin, daß As unter Ga-stabilen Synthesebedingungen auf den Ga-Gitterplätzen eingebaut wird (*antisite*) und sich somit wie ein zweifacher Donator verhält. Die berechnete Donatorenergie dieses tiefen Defektes  $\text{As}_{\text{Ga}}^{2+}$  beträgt 2.7 eV [120].

Bei tiefen Temperaturen wird die Lumineszenz durch Exzitonen bei 3.473 eV dominiert [Abb. 4.5(b)], die an flache Donatoren gebunden sind ( $\text{D}^0, \text{X}$ ). Die Ursache dafür liegt in der ungewollten *n*-Dotierung von Nitriden,<sup>6</sup> die durch flache Donatoren mit Aktivierungsenergien von ca. 30 meV – sehr wahrscheinlich durch Si und O – entstehen. Typische Halbwertsbreiten von 5–10 meV wurden hierbei für GaN/SiC erzielt. Zusätzlich wird der Donator-Akzeptor-Übergang ( $\text{D}^0, \text{A}^0$ ) bei 3.27 eV beobachtet. Beide Emissionen werden von ihren Phononen-Repliken [ $(\text{D}^0, \text{A}^0)_{\text{ILO}}$  und  $(\text{D}^0, \text{X})_{\text{ILO}}$ ] begleitet. Die niederenergetische Schulter des ( $\text{D}^0, \text{X}$ )-Überganges bei 3.447 eV entsteht durch die Resonanz des freien Exzitonenzustandes mit der Ramanstreuung vierter Ordnung ( $\text{RS}_{n=4}$ ).

Um die optischen Eigenschaften der mittels RMBE synthetisierten GaN-Puffer bewerten zu können, wurden unter identischen Versuchsbedingungen die PL von GaN-

<sup>6</sup>Die Konzentration von Fremdatome im GaN wird im wesentlichen durch die Reinheit während der Synthese bestimmt. Dafür spricht, daß in den letzten 20 Jahren die *n*-Hintergrunddotierung von  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  [26] auf  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  reduziert werden konnte. Die Etablierung der UHV-Technologie, hochreine Precursor-Gase und Zellen-Elemente und eine sorgfältige Substrat-Präparation waren notwendig, um derart geringe Restdotierungen zu erreichen.

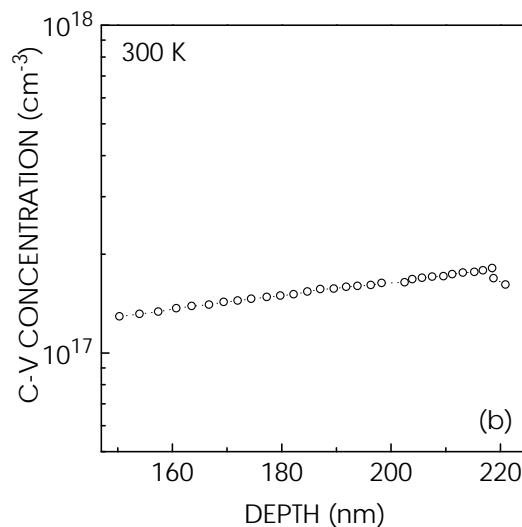
Puffern untersucht, die mittels PAMBE und MOCVD auf SiC- und Saphir-Substraten abgeschieden wurden. *Im Vergleich zu PAMBE- bzw. MOCVD-Schichten ist die Intensität der bandkantennahen Lumineszenz von RMBE-Schichten vergleichbar. Hingegen sind die Halbwertsbreiten der RMBE- als auch der PAMBE-Schichten infolge tendentiell stärkerer Restdotierung immer noch höher als die von MOCVD-Schichten.*

### 4.3 Elektrische Eigenschaften

**Hall-Messungen** erlauben die Bestimmung der Konzentration und der Beweglichkeit der freien Ladungsträger in GaN- und (Al,Ga)N-Schichten. Aufgrund der unterschiedlichen Probenflächen wurde der spezifische Widerstand, die Ladungsträgerbeweglichkeit und der Leitungstyp in der *van der Pauw*-Anordnung gemessen. Alle Schichten, an denen Hall-Messungen durchgeführt wurden, mußten auf semi-isolierenden 4H-SiC(0001)-Substraten abgeschieden werden, um eine Parallelleitfähigkeit des Substrates zu verhindern.

GaN-Puffer, die direkt auf 4H-SiC(0001) abgeschieden wurden, haben eine Elektronenkonzentration  $n$  von  $0.5\text{--}2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Die Elektronenbeweglichkeiten  $\mu$  liegen im Bereich von  $100\text{--}200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ . Im Gegensatz dazu sind GaN-Schichten, die auf semi-isolierenden (Al,Ga)N-Puffern abgeschieden wurden, hochohmig. Diese erstaunliche Beobachtung läßt einen dominierenden Einfluß von Verunreinigungen, wie z. B. O und Si an der Grenzfläche Epitaxie-Schicht/Substrat, auf die Puffer-Restdotierung vermuten [121]. So wird spekuliert, daß überschüssiges Si auf 'gereinigten' SiC-Oberflächen akkumulieren kann und bei der nachfolgenden GaN-Epitaxie durch Segregation in die Schicht eingebaut wird [68]. Die komplexe Natur der vergleichsweise hohen Hintergrundkonzentrationen und niedrigen Beweglichkeiten wird in Kapitel 6 diskutiert. Ferner wird eine GaN/(Al,Ga)N-Pufferstruktur vorgestellt, die den degradierenden Einfluß dieser hochdotierten Grenzflächenregion auf die elektrischen Eigenschaften eliminiert.

**C-V-Messungen** – die Bestimmung der spannungsabhängigen Kapazität der Verarmungsschicht von dünnen Schichten – liefern umfassende Informationen über die tiefenabhängige Konzentration und Charakteristik von elektrisch aktiven Zentren [122]. Ein Metall-Schottky-Kontakt ruft durch die Bandverbiegung eine Verarmungsregion im Halbleiter hervor (*depletion region*), die als paralleler Plattenkondensator beschrieben werden kann. Durch geringfügiges Erhöhen der eingekoppelten Spannung  $\Delta V$  nimmt die Tiefe der Verarmungsschicht und damit die festen Ladungen pro Einheitsfläche  $\Delta Q$  zu. Die (Klein-Signal-) Kapazität der Verarmungsschicht definiert sich als  $C = A \lim_{\Delta V \rightarrow 0} (\Delta Q / \Delta V) = A(dQ/dV)$ , wobei  $A$



**Abbildung 4.7:** C-V-Konzentration in einem  $1 \mu\text{m}$  dicken GaN-Puffer. Zur Oberfläche hin nimmt die Konzentration auf  $1\text{--}2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  ab.

Ferner wird eine GaN/(Al,Ga)N-Pufferstruktur vorgestellt, die den degradierenden Einfluß dieser hochdotierten Grenzflächenregion auf die elektrischen Eigenschaften eliminiert.

Aus der partiellen Ableitung  $\partial C/\partial V$  am Rande der Verarmungsschicht kann die lokale Dotierungskonzentration und damit das tiefenabhängige Dotierungsprofil berechnet werden.

In Abb. 4.7 wird das tiefen aufgelöste C-V-Profil einer 1  $\mu\text{m}$  dicken GaN-Schicht gezeigt. Die oberflächennahe Konzentration an Ladungen beträgt  $1\text{--}2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Der Vergleich von C-V- und Hall-Konzentration weist darauf hin, daß die Donatorkonzentration mit zunehmender Schichtdicke signifikant abnimmt.

## 5 GaN/(Al,Ga)N Multiquantenwell-Strukturen

Dieses Kapitel widmet sich den strukturellen und optischen Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Multiquantenwells (MQW – *multiple quantum well*). Speziell bei hexagonalen Nitridschichten [auch Wurtzit- oder  $\alpha$ -(Al,Ga,In)N genannt] bedingt das Zusammenspiel von Quanteneffekten und starker Polarisation völlig neuartige Eigenschaften.

Im ersten Abschnitt werden die grundlegenden Konzepte der Piezo- und der spontanen Polarisation kurz skizziert. Danach wird gezeigt, daß die polarisationsbedingten elektrischen Felder in GaN/(Al,Ga)N-MQWs *nicht* durch hohe Dichten von freien Ladungsträgern abgeschirmt werden können. Im dritten Abschnitt wird anhand von GaN/(Al,Ga)N-MQWs der Einfluß der Grenzflächenmorphologie auf die optischen Eigenschaften studiert. Im Anhang werden kurz die Ergebnisse der Synthese von (In,Ga)N/GaN-Heterostrukturen und deren Eigenschaften vorgestellt.

### 5.1 Elektrostatische Felder in hexagonalen Nitriden

**Spontane Polarisation** Bereits 1881 beschrieb Hankel den piezoelektrischen Effekt in Ferroelektrika. Danach entstehen Ladungen an einer Grenzfläche, wenn diese durch mechanische Kräfte deformiert wird. Auf molekularer Skala bewirkt dieser Druck eine Verschiebung der positiven und negativen Ladungen dergestalt, daß sich ein elektrisches Dipolmoment bildet. Besitzt ein Kristall ein Symmetriezentrum, ist es unmöglich, mit mechanischem Druck ein Dipolmoment bzw. ein elektrostatisches Feld im Kristall zu erzeugen [123]. Existiert dagegen kein Inversionszentrum, ist der Kristall polar und somit piezoelektrisch. Als Sonderfall sind piezoelektrische Kristalle auch pyroelektrisch, wenn eine singuläre polare Achse vorhanden ist. Von den 32 Kristallklassen erlauben 20 (10) Klassen Piezoelektrizität (Pyroelektrizität).

Anders als viele III–V-Halbleitermaterialien, die in der Zinkblende-Struktur vorliegen (z. B. Arsenide, Phosphide und Antimonide), kristallisieren die Gruppe-III-Nitride im Gleichgewicht in der Wurtzit-Struktur, die nicht inversionssymmetrisch ist und eine polare Achse besitzt. Mit einfachen Symmetrieargumenten kann gezeigt werden, daß diese Halbleiter selbst im Gleichgewicht, d. h. im unverspannten Fall, eine nicht-verschwindene Polarisation – die spontane Polarisation – haben. In Anlehnung an die spontane Polarisation in Ferroelektrika, bei denen sich die Polarisation mit der Temperatur des Kristalls ändert, wird die spontane Polarisation auch als Pyropolarisation bezeichnet.<sup>1</sup> Die genaue experimentelle Bestimmung (<10%) der spontanen Polarisation ist eine bis heute ungelöste Aufgabe. Einzig Rizzi *et al.* konnten durch Photoemissionsexperimente in dünnen Schichten zwischen der Piezo- und der spontanen Polarisation unterscheiden [124].

Vor 1997 fand die spontane Polarisation in Nitriden keine Beachtung [125]. In den zurückliegenden Jahren konnte durch *ab initio*-Berechnungen [84] an hexagonalen Gruppe-III-Nitriden eindrucksvoll gezeigt werden, daß die aus spontaner Polarisation resultierenden elektrischen Felder in niederdimensionalen Heterostrukturen be-

---

<sup>1</sup>Im Gegensatz zu Ferroelektrika, bei denen die spontane Polarisation durch pyroelektrische Hysteresekurven ( $\Delta P$  vs  $\Delta T$ ) bestimmt werden kann, muß in Gruppe-III-Nitriden die spontane Polarisation theoretisch ermittelt werden.



deutenden Einfluß auf die optischen und elektrischen Eigenschaften haben. So wurde u. a. demonstriert, daß die spontane Polarisierung im GaN/AlN-Materialsystem sogar größer als die Piezopolarisation ist. Die polarisationsbedingten elektrischen Felder haben die Größenordnung  $10^6$  V/cm und sind damit nur geringfügig kleiner als die der Ferroelektrika.

*In dünnen Schichten manifestiert sich eine makroskopische Polarisierung als elektrostatisches Feld, da sich Polarisationsladungen an den Hetero-Grenzflächen aufbauen. Diese Ladungen entstehen aus Diskontinuitäten der Polarisierung an den Grenzflächen unterschiedlicher Materialien oder Zusammensetzungen.*

Während die aus der Piezopolarisation resultierenden Halbleitereigenschaften konzeptionell etabliert sind, ist die spontane Polarisierung zu einem gewissen Maße neu in der Halbleiterphysik, speziell deren praktische Auswirkung auf GaN-basierende Nanostrukturen und Bauelemente. So haben selbst Mehrfachquantenwells, deren aktive und Barriere-Schichten gitterangepaßt auf dem Substrat abgeschieden werden, so daß keine Verspannung und damit keine Piezopolarisation existiert, ein durch spontane Polarisierung verursachtes elektrisches Feld.

Die spontane Polarisierung besitzt eine *feste Orientierung* im Kristall, die für die [0001]-Polarität des Kristalls in die Wachstumsrichtung zeigt. Daraus folgt, daß (1) die Effekte durch die spontane Polarisierung in dieser Richtung maximal werden und (2) deren Beschreibung eindimensional betrachtet werden kann. Die typische Struktur eines Übergitters oder MQWs ist -C-A-C-A- (A – active, C – cladding), deren individuelle Schichten im allgemeinen zur *in plane*-Gitterkonstante des Substrates verspannt sein können. Im einfachsten Fall eines vollständig verspannten MQWs können die elektrischen Felder in den individuellen Schichten näherungsweise angegeben werden als

$$\begin{aligned} E_A^{(sp)} &= I_C (P_C^{(sp)} - P_A^{(sp)}) / (I_C \epsilon_A + I_A \epsilon_C) \\ E_C^{(sp)} &= I_A (P_A^{(sp)} - P_C^{(sp)}) / (I_C \epsilon_A + I_A \epsilon_C), \end{aligned} \quad (5.1)$$

gegeben, wobei  $\epsilon_{A,C}$  die dielektrischen Konstanten und  $I_{A,C}$  die Dicken der Schichten A und C sind. Typische Werte der spontanen Polarisierung zeigen, daß die resultierenden elektrischen Felder sehr groß sind (bis zu 5 MV/cm). Die spontane Polarisierung wurden nur für binäre Nitridverbindungen exakt berechnet. Zur Beschreibung von ternären Mischkristallen wie z. B.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  wird die Vegard-artige Regel  $P(x) = x P_{\text{AlN}} + (1 - x) P_{\text{GaN}}$  genutzt.

**Piezopolarisation** Speziell in Halbleiter-Heterostrukturen, wie z. B. MQW-Strukturen, spielt die Piezopolarisation eine wichtige Rolle [88]. Dünne Halbleiterschichten (ca. 1–10 nm) sind in eine Halbleitermatrix mit unterschiedlichen Gitterkonstanten eingebettet. Bei pseudomorphem Wachstum sind diese Schichten durch Dehnung oder Stauchung verspannt und somit einer piezoelektrischen Polarisierung  $P^{(pz)}$  ausgesetzt. Im linearen Bereich des Piezoeffektes kann die makroskopische (anisotrope piezoelektrische) Polarisierung in nicht-zentrosymmetrischen Kristallen durch

$$P_i^{(pz)} = \sum_j e_{ij} \epsilon_j \quad (5.2)$$

ausgedrückt werden, wobei  $\epsilon_j$  die Komponenten des Spannungsfeldes im Kristall und  $e_{ij}$  die Komponenten des piezoelektrischen Tensors sind [89]. Typischerweise

findet das Wachstum der Gruppe-III-Nitride entlang der (0001)-Achse der Wurtzit-Struktur statt. Der Vektor der Polarisierung zeigt somit in die Richtung der  $c$ -Achse  $P^{(pz)} = P_z^{(pz)} \hat{z}$ . Bei pseudomorphem Wachstum und biaxialer Verspannung kann die piezoelektrische Polarisierung über die piezoelektrischen Konstanten  $e_{33}$  und  $e_{13}$  durch

$$\begin{aligned} P_z^{(pz)} &= e_{33}\epsilon_3 + e_{13}(\epsilon_1 + \epsilon_2) \\ &= 2\epsilon_1 \left( e_{13} - e_{33} \frac{C_{13}}{C_{33}} \right) \end{aligned} \quad (5.3)$$

ausgedrückt werden, wobei  $\epsilon_3 = -2(C_{13}/C_{33})\epsilon_1$  gilt [126]. Hierbei sind  $C_{ij}$  die elastischen Konstanten,  $\epsilon_{\parallel} = \epsilon_1 = \epsilon_2 = (a - a_0)/a_0$  die Verspannung in der Basalebene und  $\epsilon_{\perp} = \epsilon_3 = (c - c_0)/c_0$  die Verspannung entlang der  $c$ -Achse,  $a_0$  und  $c_0$  sind die Gitterkonstanten im Gleichgewicht. Scherungs- oder Rotationskomponenten des piezoelektrischen Tensors sollen hier nicht näher betrachtet werden.

In Analogie zu den Gleichungen 5.1 können die elektrischen Felder durch die Piezopolarisierung in total verspannten Mehrschichtstrukturen angegeben werden als

$$\begin{aligned} E_A^{(pz)} &= I_C (P_C^{(pz)} - P_A^{(pz)}) / (I_C \epsilon_A + I_A \epsilon_C) \\ E_C^{(pz)} &= I_A (P_A^{(pz)} - P_C^{(pz)}) / (I_C \epsilon_A + I_A \epsilon_C), \end{aligned} \quad (5.4)$$

wobei  $\epsilon_{A,C}$  die dielektrischen Konstanten und  $I_{A,C}$  die Dicken der Schichten A und C sind. Die Gleichungen ergeben sich aus den Forderungen, daß die dielektrische Verschiebung erhalten bleibt und die potentiellen Energien weit entfernt vom MQW identisch sind.<sup>2</sup>

## 5.2 Abschirmung der internen elektrostatischen Felder

Die elektrostatischen Felder reduzieren die Quanteneffizienz von niederdimensionalen Heterostrukturen, da durch die Separierung der Elektron- und Loch-Wellenfunktionen der strahlende Anteil der Rekombination reduziert wird [86]. Speziell für lichtemittierende Bauelement-Anwendungen ist es deshalb wünschenswert, den Einfluß der Felder zu umgehen oder zu reduzieren.

Prinzipiell kommen hierfür drei Möglichkeiten in Frage. (i) Kubische Gruppe-III-Nitride mit [001]- und [110]-Orientierung können nicht polarisiert werden, da sie vier symmetrische, äquivalente polare Achsen haben, deren Beiträge einander exakt auslöschen. Das Fehlen geeigneter Substrate und die inherente thermodynamische Metastabilität haben es trotz großer Anstrengungen jedoch bis heute verhindert, für diese Modifikation eine ausreichend hohe Qualität zu erzielen [127]. (ii) Kürzlich wurden erstmals Nitrid-Schichten mit  $[1\bar{1}00]$ -Orientierung synthetisiert. Da die polare Achse in der Basalebene liegt (*M-plane*), können sich durch die spontane Polarisierung keine elektrischen Felder in solchen MQW-Strukturen ausbilden [6]. (iii) Die Grenzflächenpolarisationsladungen werden durch freie Ladungsträger abgeschirmt. Dies

---

<sup>2</sup>Aus dem Erhalt der dielektrischen Verschiebung ergibt sich  $(P_C - P_A) = \epsilon_A E_A - \epsilon_C E_C$ . Die Periodizität erfordert  $I_A E_A + I_C E_C = 0$ . Durch Auflösung nach den Feldern  $E_{A,C}$  ergeben sich die Gleichungen 5.4.

kann z. B. durch optisch oder elektrisch gepumpte Ladungsträgerinjektion oder durch hohe Dotierung der Heterostrukturen geschehen.

Im Rahmen der Effektivmassennäherung wird behauptet, daß hohe Ladungsträgerkonzentrationen die elektrischen Felder vollständig abschirmen, wodurch sich sogenannte Flachband-Bedingungen im MQW etablieren können [86, 128]. Diese Vermutung ist jedoch irreführend: (i) Eine Erhöhung der Dotierkonzentration kann nur in das Bandprofil einer sehr hoch dotierten Heterostruktur resultieren, aber nicht in das Bandprofil einer undotierten und feldfreien Struktur, die mit Flachbandbedingungen assoziiert wird. Die Elektronen und Löcher bleiben damit selbst bei hohen Dotierkonzentrationen an den Potentialverbiegungen der Heterostruktur lokalisiert, die unweigerlich mit der hohen Dotierung verknüpft sind. Diese Potentialverbiegungen entstehen durch Akkumulation von Elektronen und deren Verarmungszonen an den GaN/(Al,Ga)N-Grenzflächen. (ii) Die Übergangsenergien der dicken Wells können sich zwar der (nicht-renormalisierten) Bandkantenenergie (für moderate bis hohe Dotierungen) annähern, eine totale Feldabschirmung und damit das Übereinstimmen der Well-Energie und der Bandkantenenergie wird jedoch durch das komplizierte Zusammenspiel von Feldabschirmung und Renormalisierung der Bandkante verhindert.

In diesem Abschnitt wird – theoretisch und experimentell – der Einfluß von freien Ladungsträgern auf die Abschirmung der polarisationsbedingten elektrischen Felder in GaN/(Al,Ga)N-MQWs studiert. Um den Einfluß des GaN-Verspannungszustandes auf die Übergangsenergien zu analysieren, wurden diese Heterostrukturen auf relaxierten GaN- und (Al,Ga)N-Puffern abgeschieden. Entgegen den Vermutungen und Betrachtungen früherer Arbeiten [89, 86, 129] wird gezeigt, daß die Rekombinationsdynamik und die Übergangsenergien der GaN-Wells selbst bei hohen Dotierkonzentrationen durch die elektrischen Felder kontrolliert werden [87].

Es wurden zwei Serien von hochdotierten ( $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) GaN/Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N-MQWs (15 Perioden) mit Well-Dicken von 1.5 nm bis 7.5 nm hergestellt, die unter identischen Wachstumsbedingungen bei 710°C auf 1 µm dicken GaN- bzw. Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N-Puffern abgeschieden wurden. Da die Gesamtdicke der MQWs kleiner als die kritische Schichtdicke ist, sind die Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N-Barrieren bzw. die GaN-Wells voll verspannt. Die optischen Eigenschaften dieser Strukturen wurden bei 5 K sowohl mit stationärer als auch zeitaufgelöster PL untersucht und mit den Resultaten aus selbstkonsistenten Schrödinger/Poisson-Berechnungen verglichen. Zur optischen Anregung der MQWs wurde bei der cw-PL die 325 nm-Linie eines He-Cd-Lasers (50 mW) genutzt. Die ps-PL wird durch die frequenzverdreifachte Linie eines Ti:Saphir-Lasers, dessen Pulslänge 400 fs und Wiederholfrequenz 76 MHz beträgt, angeregt und mit einer Streak-Kamera detektiert.

Durch das Deaktivieren des NH<sub>3</sub>-Filters wurde eine stabile Hintergrunddotierung realisiert. GaN-Referenzschichten, die auf semi-isolierendem 4H-SiC(0001) gewachsen wurden, ergaben in Hall-Messungen Elektronenkonzentrationen von  $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Diese hohen Konzentrationen sind das Resultat verstärkten Einbaus von O, der als H<sub>2</sub>O die stärkste Restverunreinigung des Ammoniakgases ist. Im Vergleich zur Si-Dotierung ist dieses Vorgehen hoch reproduzierbar, da O bis zur Löslichkeitsgrenze eingebaut wird [130].

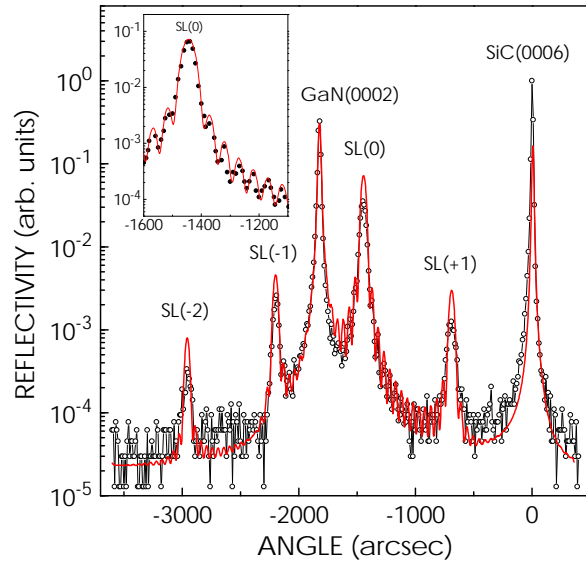
Bevor der Einfluß der Ladungsträgerkonzentration auf die elektrischen Felder in den MQW-Strukturen studiert werden kann, müssen zunächst die individuellen

Schichtdicken und der Al-Gehalt genau bestimmt werden. Dieses geschieht durch die Simulation der gemessenen  $\omega-2\theta$ -Profile und deren Anpassung mittels dynamischer Röntgenbeugungstheorie. Abbildung 5.1 zeigt ein  $\omega-2\theta$ -Profil von einem GaN/ $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ -MQW, der kohärent auf einem GaN-Puffer abgeschieden wurde. Scharfe Übergitter-Reflexe  $\text{SL}(\pm n)$  bis zur zweiten Ordnung werden beobachtet. Der Bildeinsatz zeigt einen Detailausschnitt in der Nähe des  $\text{SL}(0)$ -Reflexes. Die klar zu erkennenden Schichtdickeninterferenzen (*interference fringes*) weisen auf eine hohe Periodizität und abrupte Grenzflächen hin.

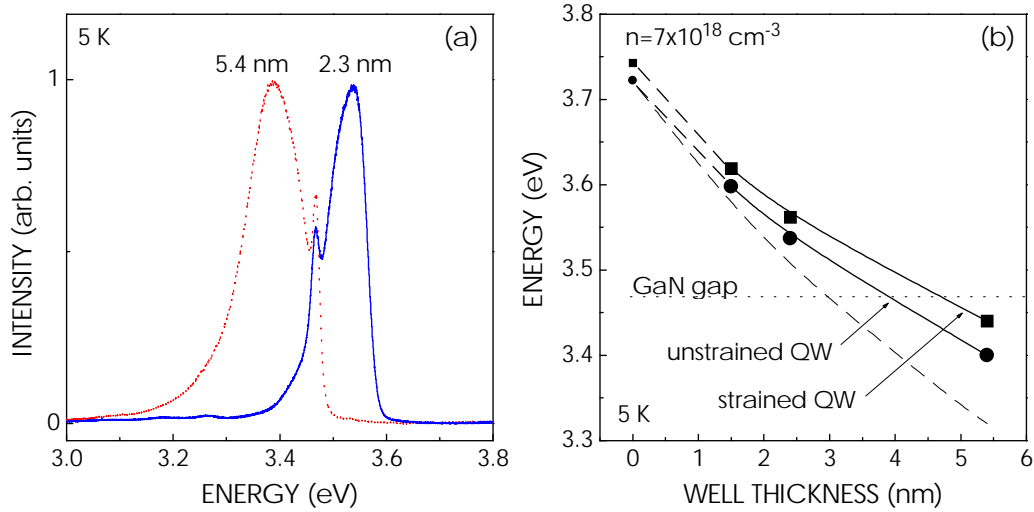
Die basierend auf der dynamischen Beugungstheorie durchgeführten Simulationen der Röntgenprofile erlauben eine exakte Bestimmung der individuellen Schichtdicken [100]. Die Position und relativen Intensitäten der Übergitter-Reflexe  $\text{SL}(\pm n)$  in Abbildung 5.1 entsprechen einem Al-Gehalt von  $0.15 \pm 0.01$ , Well-Dicken von  $7.5 \pm 0.15$  nm und Barrieren-Dicken von  $16.6 \pm 0.15$  nm. Die Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung bestätigt die strukturelle Qualität der Probe.

Die Übergangsenergien der unverspannten und kompressiv verspannten GaN-QWs sind in Abbildung 5.2 als Funktion ihrer Dicke zusammengefasst. Abb. 5.2(a) zeigt exemplarisch die PL-Spektren von zwei MQW-Strukturen, die auf GaN-Puffern hergestellt wurden. Durch das verspannungsbedingte Aufreißen des MQWs (*cracks*) wird auch die Photolumineszenz des darunterliegenden GaN-Puffers bei  $E^{(D^0,X)} = 3.467$  eV detektiert. Wie erwartet ist die Emission der dünnen Wells im Vergleich zur GaN-Bandkante durch die Quantisierung blau-verschoben. Die Emissionsenergie der dicken Wells ist kleiner als die Bandkantenenergie, was trotz hoher Ladungsträgerkonzentration eine unvollständige Abschirmung der elektrischen Felder in diesen Strukturen verdeutlicht. Die verbleibenden Felder belaufen sich auf ungefähr die Hälfte der theoretisch berechneten Felder von 1.58 MV/cm für undotierte Strukturen [gestrichelte Linie in Abb. 5.2(b)].

Die konstante Verschiebung von  $30 \pm 10$  meV zwischen den unverspannten und verspannten GaN-Wells entspricht dem theoretischen Wert (36 meV) der Blau-Verschiebung der Bandkante unter einer kompressiv biaxialen Verspannung von +0.4% [71]. Nach den Gleichungen 5.1 und 5.4 wird für die Differenz der Polarisationsfeldstärken zwischen diesen Spannungszuständen dagegen nur 3% vorhergesagt, deshalb kann eine feldinduzierte PL-Verschiebung hier vernachlässigt werden [85].

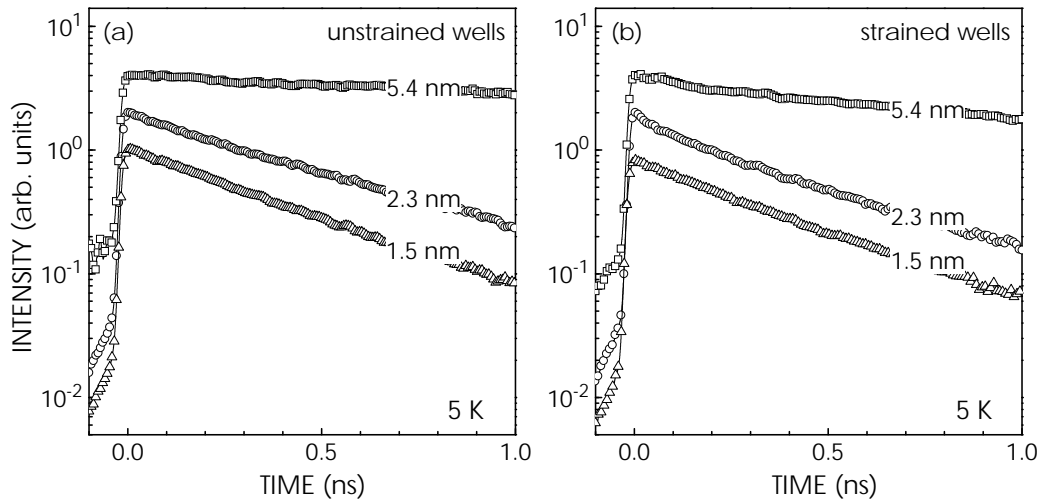


**Abbildung 5.1:**  $\omega-2\theta$ -Profil eines 15-periodischen (7.5 nm) GaN/ (14.6 nm)  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  MQWs (offene Kreise). Die scharfen Übergitter-Reflexe werden durch die Simulation (durchgezogene Linien) sehr gut wiedergegeben. Das Inset zeigt den vergrößerten Ausschnitt in der Nähe des  $\text{SL}(0)$ -Satelliten, in dem die Schichtdickeninterferenzen mit der Simulation gut übereinstimmen.



**Abbildung 5.2:** (a) PL-Spektren von dünnen (2.3 nm) und dicken (5.4 nm) unverspannten GaN-QWs. (b) Dickenabhängige Verschiebung des spektralen PL-Maximums für unverspannte (Kreise) und kompressiv verspannte (Quadrate) Wells im Vergleich zu undotierten QWs (gestrichelte Linie). Die durchgezogenen Linien verdeutlichen den Trend. Die Emissionsenergien bei der Well-Dicke 0 nm entsprechen den (Al,Ga)N-Barrieren.

Abbildung 5.3 zeigt die PL-Transienten der unverspannten (a) und kompressiv verspannten GaN-QWs (b). Für gleiche Well-Dicken sind die Zerfallszeiten für beide Spannungszustände nahezu identisch. Während die Zerfallszeiten der 1.5 nm bzw. 2.3 nm dicken QWs bei 300–400 ps liegen, nimmt sie für die 5.4 nm dicken QWs auf 2–4 ns stark zu. Die Heterostrukturen mit den 7.5 nm dicken QWs wurden von der Analyse ausgeschlossen, da die extrem langen Zerfallszeiten ( $>40$  ns) mit der 76 MHz-Repetitionsrate des gepulsten Lasers nicht zuverlässig bestimmt werden konnten. Bei kompletter Feldabschirmung in MQW-Strukturen müssen die Zerfallszeiten nahezu unabhängig von der Well-Dicke sein. Im Vergleich zu undotierten Strukturen sollte selbst bei unvollständiger Abschirmung der Elektron-Loch-Überlapp  $|\int dx \Phi_e \Phi_h|^2 \sim 1/\tau$  drastisch zunehmen und damit die Zerfallszeiten stark abnehmen. Alle optischen



**Abbildung 5.3:** PL-Transienten von (a) unverspannten und (b) verspannten GaN/ $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ -QWs für verschiedene Well-Dicken.



**Tabelle 5.1:** GaN/Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N-Materialparameter zur Schrödinger/Poisson-Berechnungen der MQW-Bandprofile.

Parameter	GaN	Al <sub>x</sub> Ga <sub>1-x</sub> N
$E_g$ (eV)	3.5	3.74
$n$ (cm <sup>-3</sup> )	$7 \times 10^{18}$	$7 \times 10^{18}$
$e_{31}$ (C/m <sup>2</sup> )	-0.49 <sup>a</sup>	-0.5065 <sup>a</sup>
$e_{33}$ (C/m <sup>2</sup> )	0.73 <sup>a</sup>	0.8395 <sup>a</sup>
$P_{Sp}$ (C/m <sup>2</sup> )	-0.029 <sup>a</sup>	-0.0368 <sup>a</sup>
$C_{13}$ (GPa)	103 <sup>b</sup>	104 <sup>b</sup>
$C_{33}$ (GPa)	405 <sup>b</sup>	400 <sup>b</sup>
$\epsilon_r$	9.77	9.58
$m_e/m_0$	0.2	0.22
$m_h/m_0$	1.0	1.0
$\Delta E_C/\Delta E_V$	—	70/30

<sup>a</sup> Bernardini *et al.* [84]

<sup>b</sup> Wright [126]

Untersuchungen wurden im Klein-Signal-Regime ( $< 10^{17}$  cm<sup>-3</sup>) durchgeführt. Damit ist eine dynamische Abschirmung der internen elektrischen Felder durch Ladungsträgerinjektion auszuschließen. Die PL zeigt weder spektrale Diffusion, noch hängt ihr temporäres Verhalten von der Anregungsdichte ab. Das Ansteigen der Zerfallszeiten ist somit eine direkte Folge des abnehmenden Elektron-Loch-Überlapps in dicken QWs.

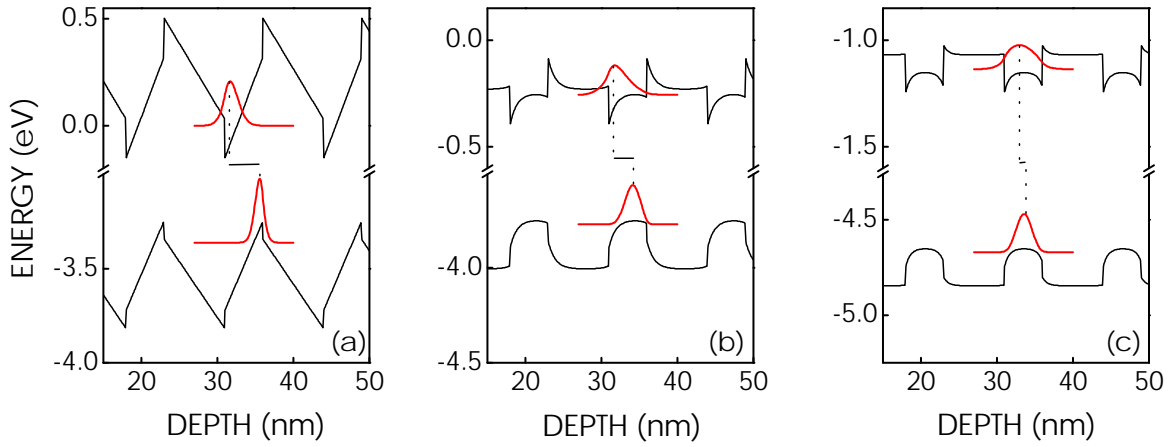
Zur quantitativen Bestimmung der Übergangsenergie und des Elektron-Loch-Überlapps wurden die spontanen und piezoelektrischen Felder in den Strukturen berechnet und mit Hilfe von selbstkonsistenten Schrödinger/Poisson-Simulationen die Bandprofile und die Elektron- und Loch-Wellenfunktionen ermittelt. Alle in der Simulation genutzten Parameter sind in Tabelle 5.1 aufgelistet.

Diese Berechnungen berücksichtigen (i) für Ladungsträgerdichten unterhalb der Mott-Dichte die Korrektur der Übergangsenergie durch die Exzitonen-Bindungsenergie [131] und (ii) für Ladungsträgerdichten überhalb der Mott-Dichte die Renormierung der Bandkante durch Vielteilchen-Effekte in Elektronengasen mit Dichten größer als  $2 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> [132].<sup>3</sup> Letzterer Effekt kann mit Störungstheorie (erster Ordnung) durch die Elektron-Elektron-Austauschenergie abgeschätzt werden.

Bezüglich des Vergleiches zwischen Simulation und Experiment muß folgende Feststellung vorangestellt werden: Unabhängig von der Position der Fermi-Energie an der Oberfläche erfahren die MQWs ein überlagertes Verarmungsfeld, daß speziell die QWs in der unmittelbaren Nähe der Oberfläche beeinflusst. Die veränderten Bandprofile verursachen so eine Verschiebung der Übergangsenergien, die zur totalen Verbreiterung der PL-Emission beitragen. In den Rechnungen wurde dieses Phänomen ausgeschlossen, indem die Übergangsenergien (und der Überlapp) für den dritten QW angegeben wurde, der sich für diese Ladungsträgerdichten bereits außerhalb der Ver-

<sup>3</sup>Innerhalb der Boltzmann-Statistik kann die Mott-Dichte in zweidimensionalen Systemen aus dem Debye-Hückel-Modell zu  $n_M = [(1.19)^2 kT] / (4E_{ex}a_0^3)$  abgeschätzt werden, wobei  $E_{ex}$  die Bindungsenergie und  $a_0$  den Bohrradius der Exzitonen angibt.





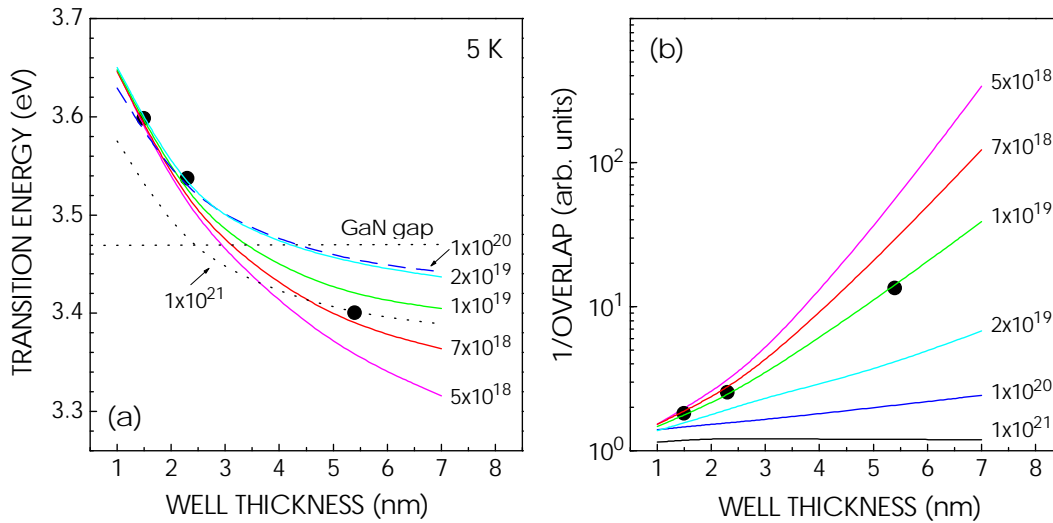
**Abbildung 5.4:** Bandkantenprofile eines [(5 nm) GaN / (8 nm)  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ] $_{15}$  MQWs für Ladungsträgerkonzentrationen von (a)  $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , (b)  $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  und (c)  $1 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Selbst bei Konzentrationen von  $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  bleiben die Elektron-Wellenfunktionen in den dreiecksförmigen Bandverbiegungen des MQWs lokalisiert.

armungsregion befindet. Trotzdem können für undotierte Strukturen die optischen Eigenschaften bis zu einigen 100 nm durch die inhomogene Feldverteilung beeinflusst werden.

Die berechneten Bandkantenprofile und Subband-Wellenfunktionen sind für unverspannte 5 nm dicke QWs mit unterschiedlichen Dotierkonzentrationen in Abbildung 5.4 dargestellt. Klar zu erkennen ist die Lokalisierung der Elektronen-Wellenfunktion an der oberen GaN/(Al,Ga)N-Grenzfläche, die den Elektron-Loch-Überlapp bis zu Elektronenkonzentrationen von ungefähr  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  stark vermindert und so die strahlende Lebensdauer erhöht. Erst bei Ladungsträgerkonzentrationen im Bereich von  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$  würden die Bandprofile *symmetrisch* werden, da sich das Maximum der Elektron-Wellenfunktion in die Mitte der Wells verschiebt. Der Elektron-Loch-Überlapp wird maximiert. *Selbst bei höchsten Dotierkonzentrationen – die experimentell nicht mehr zu realisieren sind – werden jedoch keine Flachband-Bedingungen erreicht.*

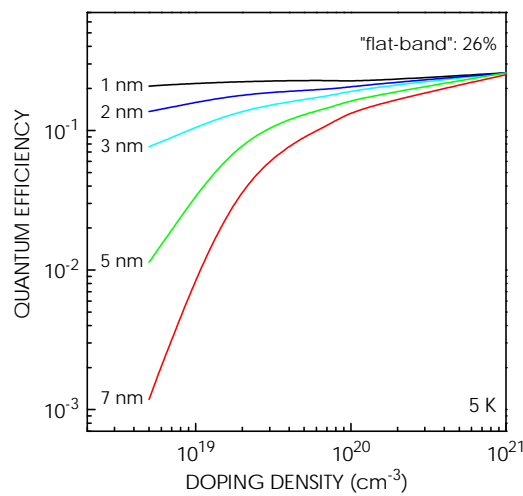
In Abbildung 5.5 sind die experimentellen Daten, die berechneten Übergangsenergien und der Elektron-Loch-Überlapp als Funktion der Well-Dicke für unterschiedliche Elektronenkonzentrationen im Fall der unverspannten QWs zusammengefaßt. Wie aus Abbildung 5.5(a) klar zu erkennen ist, nimmt die Übergangsenergie mit der Dotierung durch die Abschirmung zuerst zu, fällt dann jedoch durch die Bandkanten-Renormierung wieder ab. Für Elektronenkonzentrationen um  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  erreicht die Übergangsenergie fast die nicht-renormierte 3D-Bandkantenenergie. Die ausschließliche Betrachtung dieses PL-Verhaltens suggeriert eine im wesentlichen komplette Feldabschirmung. Die korrespondierenden Zerfallszeiten nehmen jedoch bei diesen Ladungsträgerkonzentrationen mit der Well-Dicke immer noch zu. Diese Rekombinationsdynamik zeigt, daß der Elektron-Loch-Überlapp bis zu Ladungsträgerkonzentrationen von  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  stark reduziert ist.

Die Reduzierung des Elektron-Loch-Überlapps spielt natürlich keine Rolle bei Strukturen mit einer internen Quanteneffizienz von Eins [129]. Da jedoch für GaN-basierende Strukturen mit Sicherheit nichtstrahlende Rekombinationspfade existieren, verändert sich hier die Situation. Normalerweise wird davon ausgegangen, daß auch die nicht-strahlende Rekombination vom Überlapp abhängt. Im Experiment nimmt jedoch das



**Abbildung 5.5:** Berechnete Abhängigkeit der (a) Übergangsenergie und des (b) reziproken Elektron-Loch-Überlapps von unverspannten QWs als Funktion der Well-Dicke und der Ladungsträgerkonzentration. Für die gemessene Ladungsträgerkonzentration von  $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment (Kreise). Die gemessenen Lebenszeiten in (b) wurden mit einem konstanten Faktor skaliert, indem  $\tau_{nr} \gg \tau_r$  für eine Well-Dicke von 1.5 nm angenommen wurde.

Verhältnis der PL-Intensität zwischen 300 K und 4 K mit zunehmender Well-Dicke deutlich ab. Dieser Sachverhalt wird auch von anderen Gruppen beobachtet und ist somit empirisch gesichert [7]. Damit reduziert die nichtstrahlende Rekombination die interne Quanteneffizienz im ungefähren Verhältnis zur strahlenden Lebensdauer  $\eta = (1 + \tau_r/\tau_{nr})^{-1}$ . Hier geben  $\tau_r$  und  $\tau_{nr}$  die strahlenden bzw. nichtstrahlenden Lebenszeiten an. Im Resultat ist die Abnahme der Quanteneffizienz (Abb. 5.6) für die reduzierte Strahlungseffizienz  $P$  von Leuchtdioden ( $P \sim \eta$ ) und das Ansteigen der Schwellstromdichten  $j_{th}$  in Injektionslasern ( $j_{th} \sim \eta^{-1}$ ) verantwortlich.



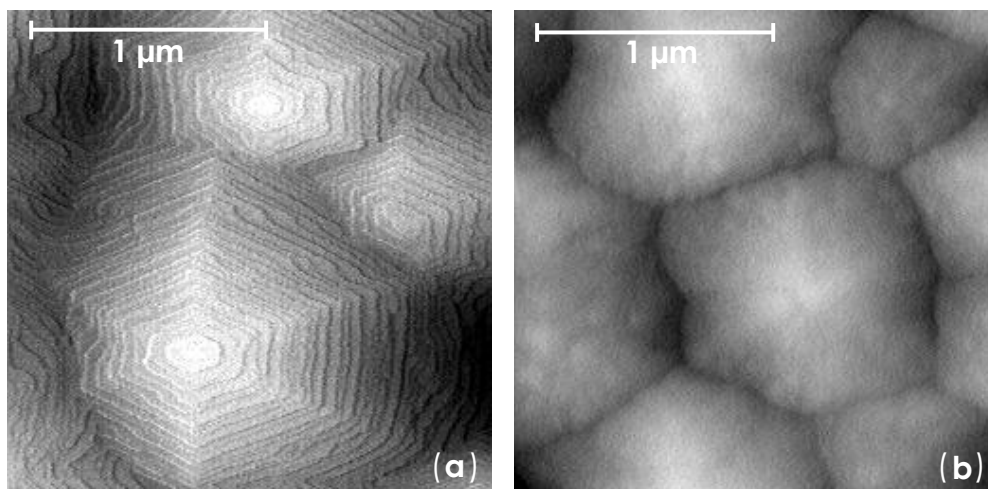
**Abbildung 5.6:** Konzentrations- und Dickenabhängigkeit der internen Quanteneffizienz für unverspannte QWs. Die 'Flachband'-Quanteneffizienz wurde willkürlich auf 26% gesetzt. Der nichtstrahlende Beitrag sei unabhängig von der Well-Dicke und Ladungsträgerkonzentration. Selbst bei Konzentrationen von  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  zeigt die Quanteneffizienz eine starke Abhängigkeit von der Well-Dicke.

Aus diesem Grund haben weiß-leuchtende Nitrid-LEDs lediglich die Lumineszenzeffizienz von herkömmlichen Glühlampen (12–20 lm/W) [133]. Bisher bestehen weiße LEDs aus einer blauen (In,Ga)N-LED, die einen gelben Phosphor pumpt, oder einer UV GaN-LED, die einen weißen Phosphor pumpt. Die Effizienz der UV-LED (1–2%) und der blauen LED (10–12%) bleibt weit hinter den Erwartungen zurück (hellste rote LED: 100 lm/W und Gasentladungslampe: 70 lm/W). Anders ausgedrückt: Durch Erhöhen der Effizienz solcher weißer 'Festkörperlampen' könnte der weltweite Energieverbrauch zur Lichterzeugung dramatisch reduziert werden [6].

### 5.3 Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen

Im diesem Abschnitt wird die Morphologie von GaN-Oberflächen und GaN/(Al,Ga)N-Grenzflächen geschildert und der Einfluß der Grenzflächen-Rauhigkeiten auf die optischen Eigenschaften von MQW-Strukturen diskutiert. Neben den bekannten Ursachen der spektralen Verbreiterungen der PL-Emission, nämlich Legierungsfluktuationen und Grenzflächenrauhigkeiten, wird ein zusätzlicher Mechanismus der PL-Verbreiterung beschrieben, der als Kombination aus den unterschiedlichen Wachstumsmodi von GaN und (Al,Ga)N und dem Spiralwachstum um Versetzungen resultiert.

**Morphologie** Abbildung 5.7(a) zeigt die Oberfläche einer GaN/Al<sub>0.22</sub>Ga<sub>0.78</sub>N MQW-Struktur mit einer 10 nm GaN-Deckschicht. Die durch GaN-Spiralwachstum geformten hexagonalen, abgeschnittenen Pyramiden besitzen große und wohlangeordnete Terrassen (50–150 nm), die durch 2H-Stufen voneinander getrennt sind [72, 82]. Eine 2H-Stufe (5.18 Å) ist eine doppelte Monolagen-Stufe, die wiederum der Höhe einer Ga-N-Bilage entspricht (2.59 Å).

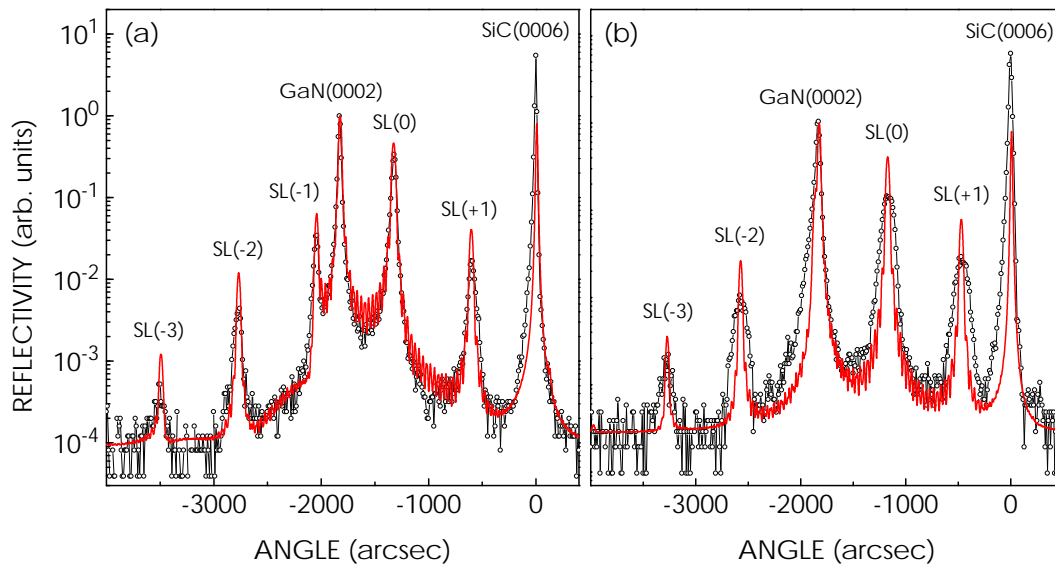


**Abbildung 5.7:** Die AFM-Bilder zeigen die Oberflächenmorphologie von 20-periodischen (7.5 nm) GaN/ (15.5 nm) Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N MQW-Strukturen mit (a) einer 10 nm GaN-Deckschicht ( $x = 0.22$ ) und (b) ohne GaN-Deckschicht ( $x = 0.29$ ), die auf einem 800 nm dicken GaN-Puffer abgeschieden wurden. Während die peak-to-valley-Höhe in diesen Abbildungen 15 nm beträgt, belaufen sich die rms-Rauhigkeiten auf (a) 2.5 Å bzw. (b) 4.0 Å. Beachtenswert ist das Spiralwachstum mit dem hexagonal angeordneten Stufen- und Terrassensystem in (a).

Das Spiralwachstum findet um Schraubenversetzungen statt. Die begleitende Stufenbündelung (*step bunching*) bevorzugt die Ausbildung von 2H-Stufen gegenüber Monolagen-Stufen. Zu beachten ist, daß solche wohlgeordneten Terrassensysteme nur bei Wachstumstemperaturen um 710°C und niedrigen V/III-Verhältnissen unter GaN-Stufenfluß entstehen. Unter diesen Wachstumsbedingungen beträgt die Kantenlänge und die Höhe der Pyramiden ca. 1–2 µm bzw. 5–15 nm.

Im Gegensatz dazu ist die (Al,Ga)N-Deckschicht weniger gut definiert [Abb. 5.7(b)]. Im speziellen können keine individuellen Stufen aufgelöst werden, was auf substantiell kleinere Terrassenweiten schließen läßt. Im Vergleich zur GaN-Oberfläche steigt die rms-Rauhigkeit an. *Die reduzierte Migrationslänge der Kationen behindert den Stufenfluß und induziert die zufällige Terrassennukleation.* Diese Vermutung wird durch das Auftreten von RHEED-Oszillationen während des (Al,Ga)N-Wachstums gestützt (Abb. 3.4).

Das  $\omega$ -2 $\theta$ -Röntgenbeugungsprofil einer GaN/(Al,Ga)N MQW-Struktur, die auf einem 800 nm dicken GaN-Puffer abgeschieden wurde, wird in Abb. 5.8(a) dargestellt. Intensive Übergitter-Satelliten bis zur dritten Ordnung sind klar zu erkennen. Die dynamische Röntgensimulation der Meßdaten erlaubt eine exakte Bestimmung des Al-Gehaltes ( $0.22 \pm 0.005$ ), der Well-Dicken ( $7.5 \pm 0.15$  nm) und der Barriere-Dicken ( $15.5 \pm 0.15$  nm). Die gute Übereinstimmung zwischen Simulation und experimentellen Daten bestätigt die exzellente Grenzflächen-Qualität der Struktur. Bei der Probe mit dem Al-Gehalt von 29% [Abb. 5.8(b)] sind die Übergitter-Reflexe im Vergleich zur Simulation wesentlich verbreitert, was auf ein Ansteigen der (Al,Ga)N-Rauhigkeit mit dem Al-Gehalt schließen läßt. Tatsächlich bestätigen PL-Messungen an diesen Strukturen diese Vermutung, da die spektrale Breite der QW-Emission von 74 meV ( $x = 0.22$ ) auf 104 meV ( $x = 0.29$ ) ansteigt. Schließt man die Wachstumsmodi und die Oberflächenmorphologie von (Al,Ga)N [Abb. 3.4(b) und 5.7(b)] mit in die Betrachtung



**Abbildung 5.8:**  $\omega$ -2 $\theta$ -Profil von 20-periodischen (7.5 nm) GaN/ (15.5 nm)  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  MQW-Strukturen (offene Kreise) mit einem Al-Gehalt von (a)  $x = 0.22$  und (b)  $x = 0.29$ . Während in (a) die Messung exzellent mit der Simulation (durchgezogene Linien) übereinstimmt, kann in (b) eine deutliche Verbreiterung der Übergitter-Reflexe beobachtet werden.

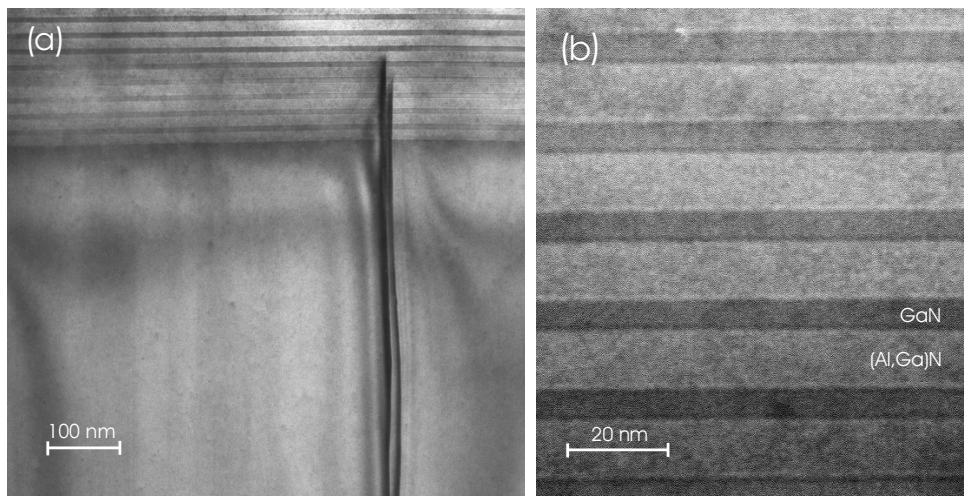


ein, läßt sich das Aufräumen der  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ -Grenzfläche auf die zusammensetzungsbedingte Reduzierung der (Al,Ga)-Migrationslängen zurückführen.

Abbildung 5.9(a) zeigt das TEM-Bild einer  $\text{GaN}/\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ -Heterostruktur, die unter Ga-reichen Wachstumsbedingungen auf einem  $1.5\ \mu\text{m}$  dicken GaN-Puffer abgeschieden wurde. Die in Abb. 5.7 dargestellte Oberflächenmorphologie legt nahe, daß die Zentren der Pyramiden genau in den durchstoßenden Schraubenversetzungen liegen. Tatsächlich erkennt man eine leichte Krümmung des MQW-Stapels, der sein Maximum bei der Schraubenversetzung hat. Der Höhengradient beträgt ungefähr  $10\ \text{nm}$  pro  $1\ \mu\text{m}$  und stimmt mit den (präziseren) peak-to-valley-Rauhigkeiten aus den AFM-Bildern gut überein. Trotzdem zeigt der vergrößerte Ausschnitt in Abb. 5.9(b) mikroskopisch gerade und abrupte Grenzflächen.

Um den Einfluß der Grenzflächenrauhigkeiten auf die PL-Linienbreite zu bestimmen, wurden zwei Probenserien untersucht, die bereits im vorhergehenden Abschnitt studiert wurden. Es handelt sich dabei um 15-periodische  $\text{GaN}/(\text{Al,Ga})\text{N}$  MQW-Strukturen mit unterschiedlicher Well-Breite, die unter gleichen Wachstumsbedingungen auf  $1\ \mu\text{m}$  dicken GaN- bzw. (Al,Ga)N-Puffern hergestellt wurden. Da die totale Dicke der MQWs kleiner als die zugehörige kritische Schichtdicke ist, sind entweder die (Al,Ga)N-Barrieren oder die GaN-Wells verspannt.

Bei  $\text{GaN}/(\text{Al,Ga})\text{N}$ -Heterostrukturen sind zwei grundlegende Mechanismen der inhomogenen PL-Verbreiterung wichtig: (i) Die Legierungsverbreiterung (*alloy broadening*) entsteht durch mikroskopische Schwankungen des Al-Gehaltes in den (Al,Ga)N-Barrieren (und damit der Barrierenhöhe), die die Emissionsenergie der QWs verschiebt. Zudem verursachen diese Zusammensetzungsfluktuationen eine Veränderung der piezo- und pyroelektrischen Felder in den  $\text{GaN}/\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ -MQWs ( $1.6\ \text{MV}/\text{cm}$ ) [87], die wiederum die QW-Emission verbreitern. Die Legierungsverbreiterung steigt mit zunehmendem Al-Gehalt an. (ii) Die Verbreiterung durch Grenzflächenrauhigkeit (*interface roughness broadening*) wird durch mikrosko-

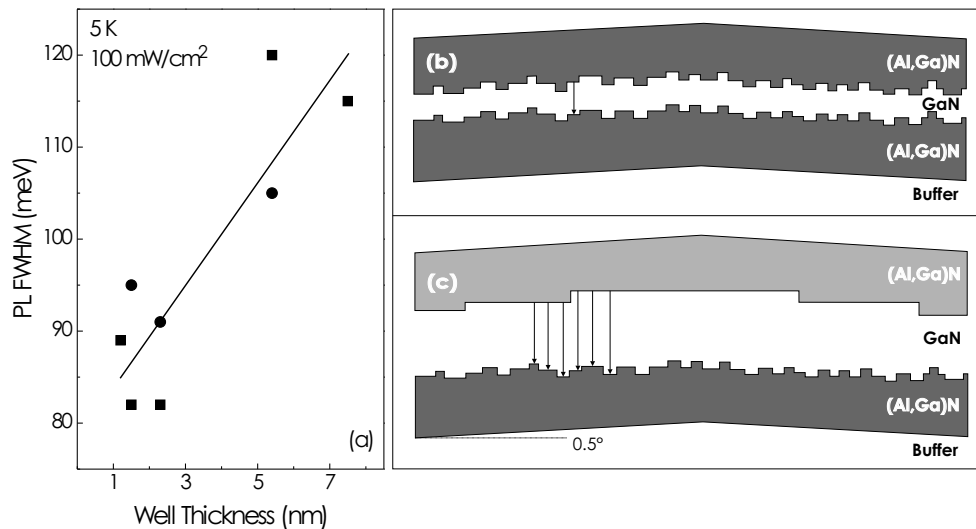


**Abbildung 5.9:** (a) TEM-Übersichtsbild einer (7.5 nm)  $\text{GaN}/(14.6\ \text{nm})\ \text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  MQW-Struktur. (a) Der Querschnitt offenbart zwei Schraubenversetzungen, die sich im Zentrum des leicht verkippten MQW-Stapels befinden. (b) Der vergrößerte Ausschnitt desselben Bildes zeigt die mikroskopisch geraden und abrupten Grenzflächen.

pische Dickenfluktuationen der QWs hervorgerufen, die die Quantisierungsenergie speziell bei dünnen Wells ändert. Durch die überlagerten elektrischen Felder in diesen Strukturen wird die Linienbreite der QW-Emission zusätzlich verbreitert. In diesem Fall führen Dickenfluktuationen von  $\pm 1$  ML zu einer theoretischen Verbreiterung von 83 meV. Obwohl die Grenzflächen atomar glatt sind, konnte eine spektrale Aufspaltung der QW-Emission infolge des Stark-Effektes nicht detektiert werden, da die hohe Dotierung der GaN-QWs eine Zunahme der intrinsischen Emissionsbreiten induziert [112].

Jetzt soll der Einfluß der elektrischen Felder auf die Energie der QW-Emission betrachtet werden. In Strukturen wie z. B. GaAs/(Al,Ga)As MQWs, die frei von elektrischen Feldern sind, nimmt der Einfluß der oben erläuterten Verbreiterungsmechanismen und damit auch die spektrale Breite der QW-Emission mit zunehmender Well-Dicke monoton ab [134, 135, 136]. Wie in Abschnitt 5.2 beschrieben wurde, kommt es hingegen für GaN-basierende MQW-Strukturen zu einer feldbedingten Lokalisierung der Elektron- und Loch-Wellenfunktionen an den gegenüberliegenden Seiten der Wells. Das dickenunabhängige 'Pinnen' der Wellenfunktionen legt somit die Vermutung nahe, daß auch die PL-Breite für solche MQW-Strukturen unabhängig von der Well-Dicke und nur abhängig von dem Al-Gehalt ist.

Erstaunlicherweise wird eine deutliche PL-Verbreiterung mit zunehmender Well-Dicke beobachtet (Abb. 5.10). Um dieses Verhalten verstehen zu können, muß die oben diskutierte besondere Grenzflächenmorphologie sowie die unterschiedlichen Wachstumsmodi von GaN und (Al,Ga)N betrachtet werden. (1) Das Spiralwachstum induziert eine lokale Verkipfung der Oberfläche. (2) Die (Al,Ga)N-Oberfläche ist durch zufällige Terrassennukleation pseudo-glatt (kurze Terrassen mit monoatomaren Stufen



**Abbildung 5.10:** (a) Abhängigkeit der PL-Breite von der Well-Dicke für 15-periodische GaN-MQWs. Alle Strukturen wurden unter gleichen Bedingungen mit einem Al-Gehalt von  $x = 0.15$  auf 1  $\mu\text{m}$  dicken GaN-Puffern (Quadrate) und Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N-Puffern (Kreise) hergestellt. Die Linie verdeutlicht den Trend. (b) und (c) Schematisches Modell für GaN/(Al,Ga)N-Grenzflächen. Für dünne Wells (b) wird die (Al,Ga)N-Morphologie in wesentlichen von GaN kopiert. Für dicke Wells (c) erhöht der GaN-Stufenfluß die Terrassenbreite der oberen Grenzfläche und bildet 2H-Stufen aus. Die Skizze ist nicht maßstabsgetreu.



fen). (3) Die GaN-Oberfläche ist aufgrund der Stufenfluß-Deposition und der Stufenbündelung atomar glatt (lange Terrassen mit 2H-Stufen).

Die Umwandlung einer materialabhängigen Oberflächenmorphologie, wie z. B.  $(\text{Al,Ga})\text{N} \rightarrow \text{GaN}$ , benötigt zweifelsfrei eine bestimmte Schichtdicke. Deshalb sollten sehr dünne GaN-Schichten im wesentlichen die vorgegebene  $(\text{Al,Ga})\text{N}$ -Morphologie kopieren. Dadurch entstehen verkippte QWs mit zufälliger Monolagen-Rauhigkeit [Abb. 5.10(b)]. Mit zunehmender Dicke jedoch baut das GaN seine spezifische Oberflächenmorphologie auf. Dadurch entstehen lokal keilförmige QWs mit kontinuierlich variierender Dicke [Abb. 5.10(c)]. Im Resultat wird durch die makroskopischen Anregungsfläche der PL ein quasi-kontinuierliches Ensemble von einander überlappenden individuellen Emissionsenergien detektiert. Die unterschiedlichen Wachstumsmodi von GaN und  $(\text{Al,Ga})\text{N}$  erklären somit in Verbindung mit einem ausgeprägten Spiralwachstum um Versetzungen das Ansteigen der spektralen QW-Breiten mit den Well-Dicken.

## 6 Heterostruktur-Feldeffekt-Transistoren

In diesem Kapitel werden nach einer kurzen Einführung die elektrischen und strukturellen Eigenschaften von (Al,Ga)N/GaN-Heterostrukturen diskutiert und mit den Synthesebedingungen korreliert. Für diese Strukturen wurden Simulationen der temperaturabhängigen Elektronenbeweglichkeiten unter Beachtung aller limitierenden Streumechanismen durchgeführt.

### 6.1 Einführung

GaN-basierende Feldeffekt-Transistoren (*HFET – heterostructure field effect transistor*) sind Gegenstand intensiver Forschung. Potentielle Anwendungen solcher Transistoren – z. B. der Betrieb bei hohen Spannungen, Leistungen, Frequenzen und Temperaturen – machen dieses Materialsystem zur attraktiven Alternative zu SiC [35, 137]. Obwohl die effektive GaN-Elektronenmasse dreimal größer als die von GaAs ist ( $m^*/m = 0.22$ ) und die Beweglichkeiten von GaN-Volumenkristallen wesentlich kleiner als die in GaAs sind, haben Gruppe-III-Nitride höhere Sättigungsgeschwindigkeiten ( $2.5 \times 10^5$  m/s) und infolge großer Bandlücken eine höhere thermische und chemische Stabilität [138].

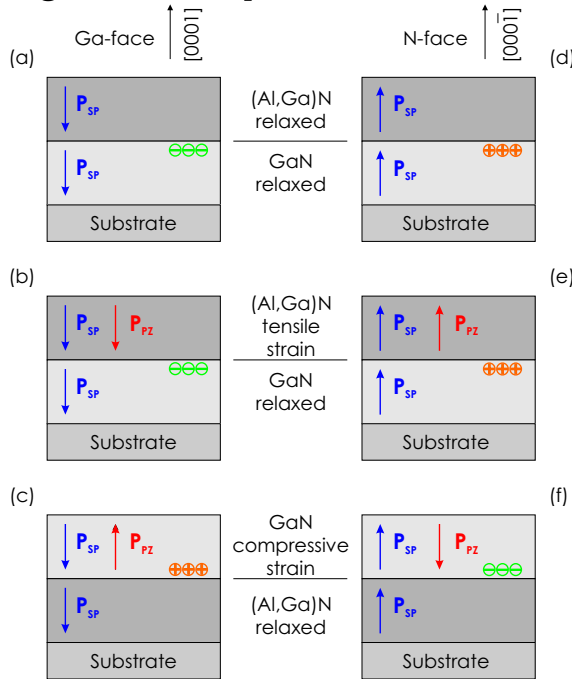
Die besonderen Eigenschaften der GaN-HFETs basieren vor allem auf der Ausbildung eines zweidimensionalen Elektronengases (2DEG) mit Ladungsträgerkonzentrationen von über  $1 \times 10^{13}$  cm<sup>-2</sup>, die etwa zehnmal höher als in konventionellen III-V-Halbleitern sind. Diese außergewöhnlich hohen 2DEG-Schichtkonzentrationen entstehen durch die polarisationsbedingten elektrostatischen Felder in verspannten Gruppe-III-Nitriden [84], die die Akkumulation von hohen Grenzflächenladungen forcieren.

### 6.2 Polarisationsbedingte zweidimensionale Elektronengase

In (Al,Ga)As/GaAs-Strukturen induziert die Modulationsdotierung, d. h. die Dotierung von (Al,Ga)As-Barrieren nahe der (Al,Ga)As/GaAs-Grenzfläche, eine 2D-Ladungsträgerakkumulation in der undotierten GaAs-Grenzflächenregion. Die Elektronen sammeln sich nahe der Grenzfläche in der GaAs-Schicht und bilden ein zweidimensionales Elektronengas, indem sie eine dreiecksförmige Potentialmulde erzeugen. Im Vergleich zu dotierten Schichten haben diese Elektronen höhere Beweglichkeiten, da die Ladungsträger örtlich von den als Streuzentren wirkenden Dotieratomen separiert sind. Dieser Effekt wird für die Realisierung von HEMTs (*high electron mobility transistor*) genutzt [139].

*In GaN-basierenden Heterostrukturen hat eine moderate Dotierung der (Al,Ga)N-Deckschicht wenig Einfluß auf die Dichte des zweidimensionalen Ladungsträrgases, da – im Gegensatz zum (Al,Ga)As-System – die 2DEG-Schichtkonzentration im wesentlichen durch die elektrostatischen Felder bzw. den Al-Gehalt der (Al,Ga)N-Inversionsschicht bestimmt wird.*

**Polarisation** Ohne externe elektrische Felder ist die totale Polarisation in GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen die Summe aus spontaner Polarisation und der verspannungsinduzierten piezoelektrischer Polarisation.



**Abbildung 6.1:** Orientierungen der spontanen und piezoelektrischen Polarisation ( $P_{sp}$  bzw.  $P_{pz}$ ) in Ga-face und N-face (Al,Ga)N/GaN-Heterostrukturen mit unterschiedlichen Verspannungszuständen, die zur Entstehung von festen Grenzflächenladungen  $\pm\sigma$  führt [139].

Für [0001]-orientierte (*Ga-face*) Heterostrukturen ist die spontane Polarisation negativ [84], d. h. sie zeigt zum Substrat hin [Abb. 6.1(a)-(c)]. Im (Al,Ga)N wird die piezoelektrische Polarisation unter tensiler (kompressiver) Verspannung negativ (positiv). Als Konsequenz richten sich die piezoelektrische und spontane Polarisation bei tensiler (kompressiver) Verspannung der (Al,Ga)N-Deckschicht parallel (antiparallel) aus. Wird die [0001]-Orientierung (Ga-face) zur  $[000\bar{1}]$ -Orientierung (N-face) umgekehrt, wechselt auch das Vorzeichen der spontanen und Piezopolarisation. Abb. 6.1 faßt die Polarisationsrichtungen für Ga-face, N-face, verspannte und unverspannte GaN/(Al,Ga)N und (Al,Ga)N/GaN-Heterostrukturen zusammen.

Die Polarisationsdifferenz an den GaN/(Al,Ga)N-Grenzflächen bedingt die Bildung fester Ladungen an der Grenzflächenschicht

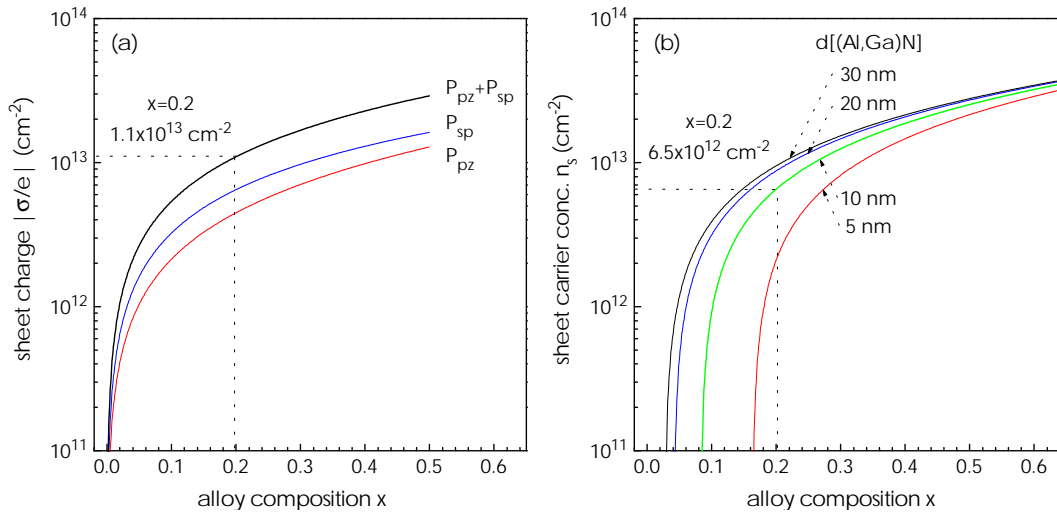
$$\sigma = P(\text{top}) - P(\text{bottom}) = [P_{sp}(\text{top}) + P_{pz}(\text{top})] - [P_{sp}(\text{bottom}) + P_{pz}(\text{bottom})]. \quad (6.1)$$

Ist sie an einer Grenzfläche positiv ( $+\sigma$ ), werden diese festen Ladungen durch freie Elektronen kompensiert. Die Elektronen bilden ein 2DEG mit einer Ladungsträgerkonzentration  $n_s$ , vorausgesetzt, daß die Leitungsband-Differenz (*-offset*) zwischen GaN und (Al,Ga)N einen gebundenen Zustand unterhalb des Fermi-Niveaus zuläßt. Negative Polarisationsladungen ( $-\sigma$ ) verursachen die Akkumulation von freien Löchern an der Grenzfläche. Es bildet sich ein zweidimensionales Löchergas (2DHG). Variationen des Al-Gehaltes, der Oberflächenrauhigkeit oder des Spannungszustandes verändern die lokale polarisationsbedingte Ladungsdichte.

In  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ -Heterostrukturen kann die von dem Al-Gehalt  $x$  abhängige Ladungsdichte  $\sigma(x)$  durch die lineare Interpolation der Materialparameter von GaN und AlN [139] unter Anwendung von Gleichung 6.1 mit

$$\begin{aligned} |\sigma(x)| &= |P_{pz}(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) + P_{sp}(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) - P_{sp}(\text{GaN})|, \\ &= \left| 2 \frac{a(0) - a(x)}{a(x)} \left[ e_{31}(x) - e_{33}(x) \frac{C_{13}(x)}{C_{33}(x)} \right] + P_{sp}(x) - P_{sp}(0) \right| \end{aligned} \quad (6.2)$$

abgeschätzt werden. Wird der Al-Gehalt in der (Al,Ga)N-Deckschicht erhöht, steigt die piezoelektrische und spontane Polarisation fast linear. Abbildung 6.2(a) verdeutlicht den Anstieg der Grenzflächen-Ladungsdichte  $\sigma/e$  mit dem Al-Gehalt  $x$ . Für  $x = 0.2$



**Abbildung 6.2:** (a) Einfluß der spontanen, piezoelektrischen und totalen Polarisation sowie des Al-Gehaltes auf die Polarisationsladungen an der Grenzfläche einer Ga-face (Al,Ga)N/GaN-Heterostruktur. (b) 2DEG-Ladungsträgerdichte für 5 nm, 10 nm, 20 nm und 30 nm dicke (Al,Ga)N-Deckschichten in derselben Struktur. Die Abschätzungen basieren auf der linearen Interpolation der (Al,Ga)N-Materialparameter.

wird eine Ladungsdichte von  $\sigma/e = 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  erreicht. Diese hohen Grenzflächen-Ladungsdichten lassen auch hohe 2DEG-Ladungsträgerdichten erwarten.

**2DEG-Ladungsträgerdichte** Freie Elektronen kompensieren die hohen Polarisationsfelder an der (Al,Ga)N/GaN-Grenzfläche. Die maximalen Ladungsträgerdichten an diesen Grenzflächen können in nominell undotierten Heterostrukturen durch

$$n_s(x) = \frac{+\sigma(x)}{e} - \left( \frac{\epsilon_0 \epsilon(x)}{de^2} \right) [e\Phi_b(x) + E_F(x) - \Delta E_C(x)] \quad (6.3)$$

beschrieben werden, wobei  $d$  die Dicke der (Al,Ga)N-Deckschicht,  $e\Phi_b$  die Schottky-Barriere des Gate-Kontaktes,  $E_F$  die Fermi-Energie im Verhältnis zur GaN-Bandkantenenergie und  $\Delta E_C$  der Leitungsband-Offset an der (Al,Ga)N-Grenzfläche ist. Die berechneten maximalen Grenzflächen-Ladungsträgerdichten werden in Abb. 6.2(b) für unterschiedliche (Al,Ga)N-Dicken in Abhängigkeit vom Al-Gehalt zusammengefaßt.

Es ist bisher unklar, worin der Ursprung der 2DEG-Elektronen in bewußt undotierten HFET-Strukturen liegt: Zur Erklärung wurden Polarisierungseffekte in Verbindung mit feldinduzierter Generation [139] und ungewollte (Al,Ga)N-Dotierung [140] vorgeschlagen. Ein wahrscheinlicheres Szenario jedoch ist die Existenz von donatorartigen Oberflächenzuständen [141]. Vorausgesetzt, daß die donatorartigen Oberflächenzustände tief in der (Al,Ga)N-Bandlücke lokalisiert sind, werden sie alle bei geringen (Al,Ga)N-Schichtdicken  $d$  besetzt sein – die Bildung eines 2DEGs wird unterbunden. Nimmt die (Al,Ga)N-Schichtdicke zu, nähert sich die Fermi-Energie den Donatorzuständen an der Oberfläche. Die Übereinstimmung beider Energie-Positionen löst das Entleeren der Oberflächenzustände in den 2D-Kanal aus – unter Zurücklassen von positiven Oberflächenladungen bildet sich ein 2DEG. Anders ausgedrückt, bei undotierten HFET-Strukturen stammen alle 2D-Elektronen aus donatorartigen Oberflächenzuständen.

Für das Oberflächen-Donator-Modell spricht, daß damit die Oberflächen-Barrierenhöhe von  $e\Phi_B = 1.65$  eV in sehr guter Übereinstimmung mit experimentellen Messungen berechnet werden konnte.<sup>1</sup>

**2DEG-Beweglichkeit** Neben der Ladungsträgerkonzentration  $n_s$  ist die Beweglichkeit des zweidimensionalen Elektronengases  $\mu$  die wichtigste Kenngröße einer HFET-Struktur (vor der Prozessierung zum Bauelement).  $\mu$  kann durch die Drift-Beweglichkeit der Elektronen im 2DEG mit  $\mu(x) = [en_s(x)\rho(x)]^{-1}$  abgeschätzt werden, wobei  $\rho(x)$  den minimalen 2DEG-Schichtwiderstand angibt.

In Analogie zu den Meilensteinen bei der Herstellung von modulationsdotierten (Al,Ga)As/GaAs-Strukturen [143, 144] werden die 2DEG-Beweglichkeiten auch bei GaN-basierenden Transistoren von der UHV-Güte und Element-Reinheit während der MBE-Synthese sowie der Gitterfehlpassung bestimmt. So wurde mit hohem technologischen Aufwand die Reinheit des Gruppe-V-Precursors und des MBE-Systems (As-freie Drei-Kammer-MBE) derart verbessert, daß GaN-HFET-Strukturen mit Rekord-Beweglichkeiten von  $\mu(13\text{ K}) = 51.700\text{ cm}^2/\text{Vs}$  hergestellt werden konnten [145]. Zur Reduzierung der Versetzungsdichten (und damit der 2DEG-Streuung) wurden die HFETs homoepitaktisch auf MOCVD-gewachsene GaN-Schichten abgeschieden. Bei Raumtemperaturen reduziert jedoch die starke Parallellleitfähigkeit dieser HFETs durch die Hintergrunddotierung im MOCVD-Puffer die Beweglichkeiten auf unter  $1000\text{ cm}^2/\text{Vs}$ .

**Streumechanismen** In (Al,Ga)As/GaAs-HEMTs ist die geringe Ionisierungsenergie des flachen Si-Donators (4 meV) der Grund dafür, daß die 2DEG-Beweglichkeit bei moderaten Temperaturen (50–200 K) vorwiegend durch Streuung an ionisierten Störstellen limitiert wird. Hinzu kommen bei tiefen Temperaturen lediglich Streuprozesse, die durch Schwankungen des Al-Gehaltes und durch Grenzflächenrauigkeiten entstehen.

In (Al,Ga)N/GaN-HFETs hingegen haben selbst flache Donatoren wie Si und O eine Aktivierungsenergie von ca. 30 meV, d. h., es muß auch die Streuung an neutralen Störstellen berücksichtigt werden. Hierzu muß bemerkt werden, daß dieser Streuprozess temperaturunabhängig ist [146], die Streuung an ionisierten Streuzentren dagegen mit zunehmender Temperatur abnimmt [147, 148]. Desweiteren sind Nitrid-Oberflächen infolge höherer Oberflächenenergien reaktiver als GaAs-Oberflächen, d. h. Fremdatome werden mit höherer Wahrscheinlichkeit eingebaut. So hat O einen Haftkoeffizienten (*sticking coefficient*) nahe Eins, d. h. alle vorhandenen O-Atome werden auch eingebaut. Auch Kristalldefekte, z. B. Punktdefekte oder Versetzungen, die durch Spannungsabbau während der GaN-Heteroepitaxie entstehen, wirken als Streuzentren und können die 2DEG-Beweglichkeit stark begrenzen.

Für Ladungsträgerkonzentrationen von über  $1 \times 10^{13}\text{ cm}^{-2}$  nimmt der Abstand des 2DEGs zur (Al,Ga)N/GaN-Grenzfläche stark ab ( $\leq 2\text{ nm}$ ), was – in Abhängigkeit von der Kristallqualität – zum Ansteigen der Streuung durch Grenzflächenrauigkeiten

---

<sup>1</sup>Das Modell macht *a priori* keine Aussage über das Pinnen der Fermi-Position an der Oberfläche. Selbst beim Pinnen an Oberflächenzuständen, das durch hohe Dichten von Donatoren und Akzeptoren induziert wird ( $\sim 10^{14}\text{ cm}^{-2}$  [142]), ergibt die Berechnung vergleichbare Oberflächen-Barrierenhöhen.

und Legierungsfluktuationen führt und so die 2DEG-Beweglichkeit signifikant reduziert [145]. Für Temperaturen über 100 K wird die Elektronenbeweglichkeit durch polar-optische Phononenstreuung limitiert, die bei Raumtemperatur ca.  $2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  beträgt [149].

Aus dem temperaturabhängigen Verhalten der Leitfähigkeit und Beweglichkeit können Heterostrukturen mit einem zweidimensionalen Elektronengas von Strukturen ohne 2D-Kanal unterschieden werden. In leicht dotierten Schichten nimmt die Leitfähigkeit mit der Temperatur ab. Zum einen fällt die Anzahl der freien Elektronen durch das 'Ausfrieren' der Ladungsträger exponentiell ab, zum anderen wird die Beweglichkeit der Elektronen bei tiefen Temperaturen ( $T < 100 \text{ K}$ ) durch das Ansteigen der Coulomb-Streuung an ionisierten Donatoren reduziert. In 2DEG-Strukturen können dagegen für diese Temperaturen durch das Fehlen der stark temperaturabhängigen Streuung an ionisierten Störstellen wesentlich höhere Beweglichkeiten realisiert werden.

### 6.3 Herstellung und Charakterisierung von HFETs

Zur Herleitung der optimalen Wachstumsbedingungen müssen folgende Einflüsse auf die elektrischen Eigenschaften von HFET-Strukturen beachtet werden:

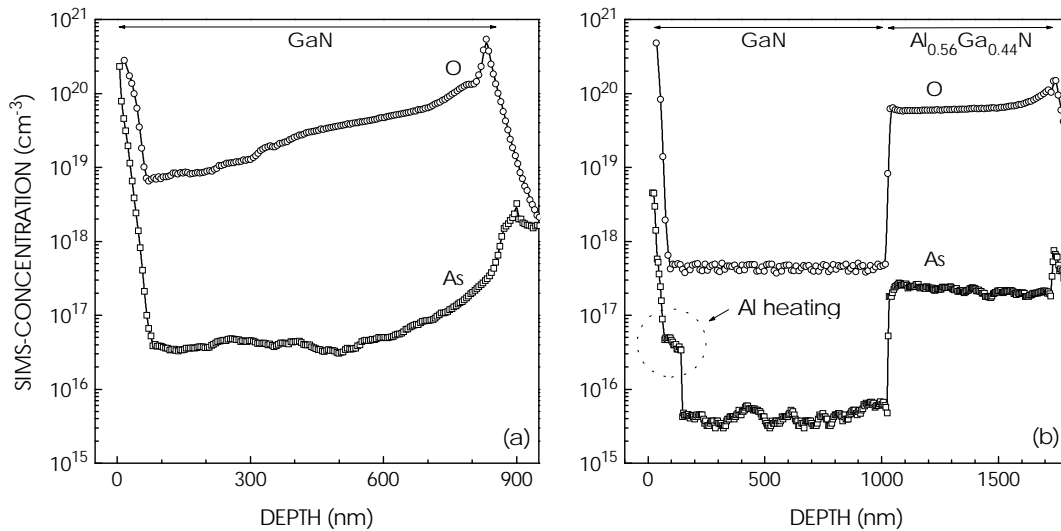
- Die Beweglichkeit der Ladungsträger an der (Al,Ga)N/GaN-Grenzfläche wird stark von der Ladungsträgerkonzentration und der Defektdichte des GaN-Puffers beeinflusst. Fremdatome, intrinsische Punktdefekte und Stickstoff-Vakanzen werden als Hauptursachen für die *n*-Hintergrundsdotierung von (nicht bewußt dotiertem) GaN und (Al,Ga)N diskutiert [141].
- Die Streuung der Ladungsträger an Fadenversetzungen und anderen (neutralen und ionisierten) Defekten reduziert die Beweglichkeiten im 2D-Kanal.
- Die Grenzflächenrauigkeit und die elektrischen Eigenschaften reagieren sehr sensitiv auf das V/III-Verhältnis [139]. GaN-Schichten, die unter  $\text{NH}_3$ -stabilen Bedingungen hergestellt wurden ( $V/III > 5$ ), haben sehr raue Oberflächen ( $rms > 20 \text{ nm}$ ). Ga-stabile Wachstumsbedingungen resultieren in Schichten mit exzellenter Kristallqualität und atomar glatten Grenzflächen. Desweiteren wird der Einbau von Fremdatomen – vornehmlich Sauerstoff aus der Restfeuchte des Ammoniakgases – auf ca.  $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  reduziert.
- Zur Unterbindung von Parallelleitfähigkeit, die die Hall-Messungen verfälschen kann und eine HFET-Funktion unmöglich macht, müssen semi-isolierende (SI) Substrate benutzt werden. Vanadium-kompensiertes 4H- oder 6H-SiC(0001) gewährleistet einen Widerstand von  $\rho > 1 \times 10^5 \Omega\text{cm}$ .
- Die Minimierung der Parallelleitfähigkeit an der verunreinigten Epitaxie-Schicht/Substrat-Grenzfläche ist von entscheidender Bedeutung für eine temperaturunabhängige Ladungsträgerkonzentrationen im 2D-Kanal und das Operationsverhalten der prozessierten Transistoren.



**Paralleleitfähigkeit** HFETs mit hochbeweglichen zweidimensionalen Ladungsträgern bedingen qualitativ hochwertige GaN-Puffer mit reproduzierbar geringer Hintergrunddotierung und Versetzungsdichte. Direkt auf SI-4H-SiC(0001) und Ga-stabil abgeschiedene GaN-Puffer ergeben in CV- und Hall-Messungen unterschiedliche Hintergrundkonzentrationen. Die Hall-Messung ermittelt die Ladungsträgerkonzentration aus dem Schichtwiderstand – es ist somit eine volumenintegrierende Meßmethode. Die CV-Messung bestimmt die Konzentrationen tiefen aufgelöst über die Ableitung der Kapazität der Oberflächenverarmungszone – es ist somit eine tiefenempfindliche Meßmethode.

Typischerweise beträgt das Konzentrationsverhältnis zwischen Hall- und CV-Messung  $n_{Hall}/n_{CV} \sim 10$ , d. h., es existiert ein starker Konzentrationsabfall von Donatoren in der Epitaxie-Schicht. Hierfür kommt nur die Grenzregion Epitaxie-Schicht/Substrat in Frage. Die möglichen Ursachen dafür können Oberflächenoxide des Substrates, aber auch höhere Verunreinigungen des  $NH_3$  am Epitaxiebeginn sein.

Um diese Vermutung zu bestätigen, wurden an den Proben SIMS-Messungen (*SIMS – secondary ion mass spectrometry*) durchgeführt. Die Sekundärionen-Massenspektrometrie ermöglicht die elementspezifische und tiefenaufgelöste Bestimmung der absoluten Konzentration von Fremdatomen in Gruppe-III-Nitriden. In einer UHV-Umgebung löst ein Ionenstrahl geladene Atome von der Oberfläche ab, die dann in einem Massenspektrometer identifiziert werden. Da die Sputterraten materialspezifisch sind und von der chemischen Umgebung abhängen, müssen zuvor elementspezifische 'Standards' durch Ionenimplantation hergestellt und vermessen werden [123].



**Abbildung 6.3:** (a) SIMS-Tiefenprofil der O-Konzentration (Kreise) und As-Konzentration (Quadrate) eines direkt auf 6H-SiC(0001) abgeschiedenen GaN-Puffers. Die Verunreinigungen nehmen im Puffer um einen Faktor 100 auf  $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  bzw.  $4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  ab. Die Grenzregion Puffer/Substrat ist durch Sauerstoff hoch  $n$ -dotiert.

(b) HFET-Struktur bestehend aus (30 nm)  $Al_{0.2}Ga_{0.8}N$ / (1.45  $\mu\text{m}$ ) GaN/ (350 nm)  $Al_{0.56}Ga_{0.44}N$  auf SI-4H-SiC(0001). Die Konzentrationen von  $n_O = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  (Kreise) und  $n_{As} = 7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  (Quadrate) im GaN-Puffer entsprechen den Detektionsgrenzen der Fremdatome. Auffallend ist der As-Anstieg auf  $3-4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  bei einer Tiefe von 120 nm (gepunkteter Kreis). Infolge unterschiedlicher SIMS-Sputterraten sind die Tiefenskalierungen nicht maßstabsgetreu. Der Konzentrationsanstieg GaN  $\rightarrow$  (Al,Ga)N ist ein Matrixeffekt, für Tiefen  $\leq 50 \text{ nm}$  hingegen ein Oberflächenartefakt.

In Übereinstimmung mit der Literatur [121, 150] kann in Abbildung 6.3(a) ein deutlicher Abfall der SIMS-Konzentration für O und As von  $5 \times 10^{20} \rightarrow 7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  bzw.  $4 \times 10^{19} \rightarrow 4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  im GaN-Puffer beobachtet werden, der unter nicht optimierten Synthesebedingungen auf ungeätzttem und nicht *in situ*-gereinigtem 6H-SiC abgeschieden wurde.

Die Ursache der hohen O-Dotierung könnten Substratoxide sein, die durch Ga aufgespalten und sukzessive in die GaN-Matrix eingebaut werden. Der grenzflächennahe As-Anstieg kann nur über die As-Kontamination der Wachstumskammer erklärt werden. Wahrscheinlich bedingt das Heizen der Effusionszellen (vor dem Beginn der Epitaxie) eine verstärkte As-Desorption vom Kryoshroud. Mit dem Epitaxiebeginn des GaN-Puffers wird das adsorbierte As sukzessive in die Schicht eingebaut.

**Puffer-Struktur** Die Realisierbarkeit und der Betrieb von Feldeffekttransistoren hängt unmittelbar vom Grad der Parallellleitfähigkeit ab. Zur Reduzierung der oxidischen Verunreinigungen an der SiC-Oberfläche wurden die Substrate vor der (Al,Ga)N-Synthese sorgfältig durch Ga-Deposition und Desorption gereinigt (vgl. Abschnitt 3.1). Trotzdem machen Restoxide und überschüssiges Si [65] auf der SiC-Oberfläche eine elektrische 'Neutralisierung' der Grenzregion notwendig (vgl. Kapitel 4.3).

Dieses wurde durch die metall-stabile Epitaxie eines  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ -Puffers auf SiC(0001) erreicht. Ab einem Al-Gehalt von  $x \sim 0.3\text{--}0.35$  gehen die flachen O-Donatoren im (Al,Ga)N in ein tiefes DX-Zentrum über, deren Aktivierungsenergie mit dem Al-Gehalt ansteigt [151]. Die freie Elektronenkonzentration nimmt in  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$  dramatisch ab, da die Aktivierungsenergie 300 meV beträgt. Der Puffer wird semi-isolierend und verhindert vollständig eine Leitfähigkeit über die Grenzfläche Epitaxie-Schicht/Substrat. Dieses Verhalten beweist den dominierenden Einfluß des O-Donators für die *n*-Leitfähigkeit von nicht bewußt dotiertem (Al,Ga)N.

Für alle HFET-Strukturen wurde ein mindestens 300 nm dicker  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ -Puffer auf 6H-SiC ( $n = 2\text{--}4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) oder 4H-SiC (SI) abgeschieden. Der Al-Gehalt des Puffers wurde unter Beachtung des Relaxationsgrades und der thermischen Restverspannung aus Röntgenbeugungsprofilen ermittelt. Abbildung 6.3(b) bestätigt die konstant geringen Hintergrundkonzentrationen von O und As im GaN-Puffer. *Die semi-isolierenden GaN/(Al,Ga)N-Puffer lösen das Problem der Parallellleitfähigkeit in Transistor-Strukturen auf pragmatische Weise, da der spezifische Schichtwiderstand größer als 10 MΩ ist. Damit könnten GaN-basierende HFETs auch auf leitfähigen Substraten hergestellt werden.*

**Wachstum des GaN-Puffers** Von Nachteil ist, daß der relaxierte (Al,Ga)N-Puffer sich nachteilig auf die nachfolgende Epitaxie des GaN-Puffers auswirkt, da mit Erreichen der kritischen Schichtdicke auch der GaN-Puffer relaxiert (Gitterfehlانpassung 1.3%). Korrespondierend zum Entstehen von Transmissionsanteilen und der Intensitätsabnahme der  $(2 \times 2)$ -Rekonstruktion im RHEED-Beugungsbild rauhte die Wachstumsfront auf. Zusätzlich wurden 'rautenartige' RHEED-Beugungsanteile beobachtet, die nicht mit thermisch geätzten GaN-Facetten korrelieren. Die Ursache dafür ist nicht verstanden, die 'Rauten' können jedoch durch Ga-stabile Wachstumsbedingungen fast vollständig unterbunden werden. Zur Reduzierung der Versetzungs- und Defektdichte betrug die Pufferdicke mindestens 1 µm.

Eine Serie von HFETs zeigte mit zunehmender Dicke der  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ -Deckschicht eine verstärkte Paralleleitfähigkeit über das nominell undotierte  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ . Diese Beobachtung legt die Vermutung nahe, daß die Deckschicht hoch dotiert ist. Im folgenden wurde deshalb die Dicke der pseudomorphen  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ -Deckschicht auf maximal 15 nm begrenzt, um ein 'Überlaufen' des 2D-Kanals zu verhindern. Damit braucht die Deckschicht nicht zusätzlich Si-dotiert zu werden. Zusätzlich scheint das Heizen der Al-Quelle für die Abscheidung der (Al,Ga)N-Deckschicht ein Ansteigen der As-Konzentration um bis zu einem Faktor 10 zu verursachen [Abb. 6.3(b)], was durch die verstärkte As-Desorption von den kontaminierten Kammerinnenwänden infolge thermischen Aufheizens erklärt werden kann.

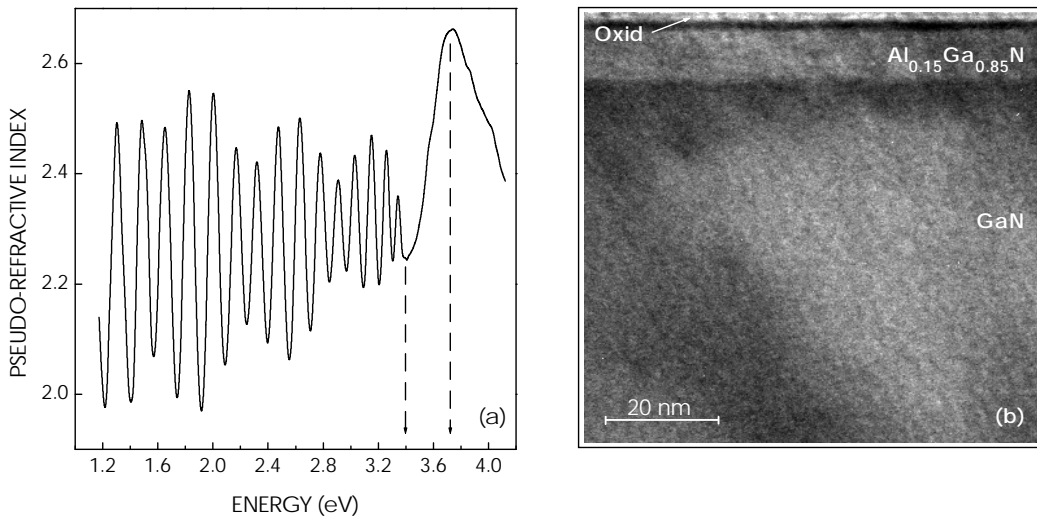
Andererseits verhindert die ungewollte (Al,Ga)N-Dotierung die Deposition einer dünnen und undotierten (Al,Ga)N-Zwischenschicht (*spacer*), der die Streuung des 2DEGs an ionisierten (Al,Ga)N-Störstellen minimieren soll.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Deckschichten mit Al-Gehalten  $x > 0.4$  und  $x < 0.12$  eignen sich nicht für HFET-Strukturen: Für  $x > 0.4$  wird (Al,Ga)N semi-isolierend, zusätzlich nimmt die (Al,Ga)N-Defektdichte durch die hohe Verspannung zum GaN dramatisch zu [139]. Für  $x < 0.15$  wird der Leitungsband-Offset so klein ( $\Delta E_C < 0.28$  eV), daß kaum Ladungsträger akkumuliert werden.

Bei Ga-stabilem Wachstum führt das Erhöhen der Substrattemperatur von 650°C auf 715°C zu einer temperaturunabhängigen Verdopplung der 2DEG-Beweglichkeit. Die höchsten Beweglichkeiten wurden für Heterostrukturen erzielt, die ohne Wachstumsunterbrechung und mit Probenrotation hergestellt wurden.

Die dünne (Al,Ga)N-Deckschicht kann mit Röntgenbeugung nicht mehr detektiert werden, deshalb wurde der Al-Gehalt aus Ellipsometriemessungen abgeschätzt. Abbildung 6.4(a) zeigt die Schichtdickeninterferenzen des Pseudo-Brechungsindex einer HFET-Struktur mit 30 nm dicker (Al,Ga)N-Deckschicht. Das Maximum des Pseudo-Brechungsindex bei 3.73 eV entspricht näherungsweise der Bandlücke der Deckschicht. Aus Referenzmessungen [152], die die legierungsabhängige (Al,Ga)N-Bandlücke und damit den Bowing-Parameter von (Al,Ga)N bestimmt haben, konnte so der Al-Gehalt der Deckschichten abgeschätzt werden. Die Oszillationen, die die totale Schichtdicke der HFET-Struktur reflektieren, sind mit einer zusätzlichen Periode, die mit 350 nm Dicke dem (Al,Ga)N-Puffer zuzuordnen ist, moduliert. Abb. 6.4(b) bestätigt die atomar glatte (Al,Ga)N/GaN-Grenzfläche der HFET-Struktur.

Abbildung 6.5 zeigt das TEM-Bild einer (10 nm)  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ / (850 nm) GaN/ (200 nm)  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ / 4H-SiC(0001) HFET-Struktur, in deren (Al,Ga)N-Puffer ein 30-periodisches AlN/(Al,Ga)N-Übergitter eingebettet ist. Mit einer sehr hohen Versetzungsdichte beginnend scheint ein großer Anteil der Fadenversetzungen innerhalb des Übergitters und an der (Al,Ga)N/GaN-Puffergrenzfläche abzuknicken und parallel zur Basalebene der Heterostruktur (nicht detektierbar) weiterzuverlaufen.<sup>2</sup> In den ersten 20 nm des GaN-Puffers werden neue Fadenversetzungen – vornehmlich mit Schlaufencharakter – gebildet. Interessanterweise haben diese Versetzungen variierende und große Winkel zur c-Achse des Kristalls, was durch defektbedingtes *Pin-*

<sup>2</sup>Rein biaxiale Verspannungen üben keine Kraft auf vertikal verlaufende Fadenversetzungen aus. Allerdings könnten unter Restverspannung an Stufen und/oder Rauigkeiten von Heterogrenzflächen Scherkräfte auf die Fadenversetzungen wirken. Fraglich ist jedoch, ob diese kleinen Verspannungen ein Abknicken der Versetzungen bewirken können.



**Abbildung 6.4:** (a) Ellipsometriespektrum eines (30 nm)  $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ / (1.2  $\mu\text{m}$ )  $\text{GaN}$ / (350 nm)  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ / 4H-SiC(0001)-HFETs. Aus den Schichtdickeninterferenzen kann sowohl die totale Schichtdicke als auch die (Al,Ga)N-Pufferdicke abgeschätzt werden. Neben der  $\text{GaN}$ -Bandlücke bei 3.4 eV wird ein zusätzliches Maximum des Brechungsindex bei 3.73 eV beobachtet, das durch die Absorption der (Al,Ga)N-Deckschicht verursacht wird. (b) TEM-Bild einer (10 nm)  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ -Deckschicht, deren Grenzfläche zum  $\text{GaN}$ -Puffer eine geringe Grenzflächenrauhigkeit aufweist. An der Oberfläche befindet sich eine 1 nm dicke amorphe Schicht, die einem Oxid zugeordnet wird. An der Grenzfläche Oxid/Deckschicht bildet sich ein Fresnel-Kontrast (dunkler Streifen).

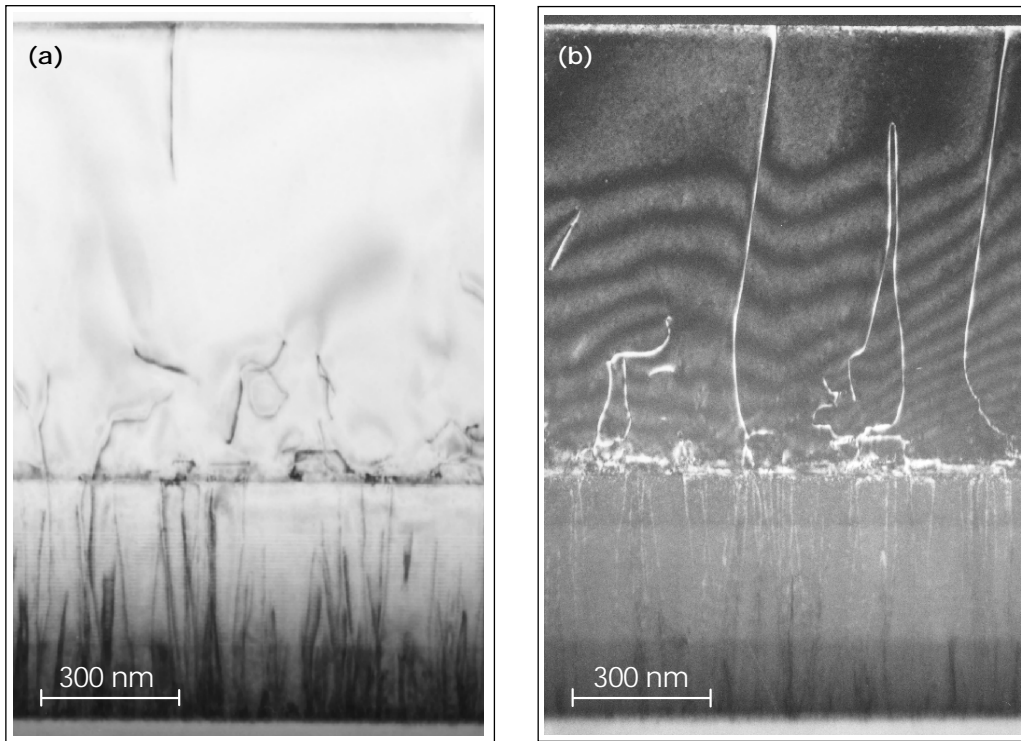
nen der Fadenversetzungen verursacht werden könnte. Die oberflächennahe Dichte der Fadenversetzungen beträgt  $1\text{--}2 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ . Die erstaunlich geringe Dichte an Fadenversetzungen bietet ideale Voraussetzungen für die reaktive MBE von HFET-Strukturen mit hohen Beweglichkeiten.

**Elektrische Eigenschaften** Die 2DEG-Beweglichkeiten und Ladungsträgerkonzentrationen wurden durch Hall-Messungen in der van der Pauw-Anordnung bestimmt. Für die Ohmschen Kontakte wurde In bei  $350^\circ\text{C}$  in die HFET-Strukturen einlegiert. Bei einem Stromdurchfluß von 0.1 mA und einem Magnetfeld von 0.5 T wurden Hall-Beweglichkeiten von bis zu  $\mu = 750 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (300 K) und  $\mu = 1400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (77 K) gemessen, die Schichtwiderstände betragen typischerweise 800-1500  $\Omega\text{cm}$ .

Magnetotransportmessungen bei tiefen Temperaturen konnten die Existenz der 2DEGs nicht eindeutig bestätigen, da keine Shubnikov-de Haas (SdH)-Oszillationen des Magnetowiderstandes  $R_{xx}$  und kein Stufenverhalten des ganzzahligen Quanten-Hall-Widerstandes  $R_{xy}$  detektiert wurden. Sehr wahrscheinlich begründet sich dieses Verhalten aus der geringen Dicke der (Al,Ga)N-Deckschicht, deren Oberfläche unter Atmosphäre stark und inhomogen oxidiert [Abb. 6.4(b)]. Die mikroskopisch variierende Konzentration der Oberflächenladungen kann durch freie Elektronen im (Al,Ga)N innerhalb von 10 nm Dicke nicht abgeschirmt werden und beeinflußt so die 2DEG-Schichtkonzentration, wodurch die SdH-Oszillationen schließlich ausgeschmiert werden. Für  $N_0 = N_d - N_a \approx 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  beträgt die Debye-Abschirmlänge<sup>3</sup>  $L_D = \sqrt{\epsilon\epsilon_0 kT / e^2 N_0} = 11 \text{ nm}$ . Da sich  $R_{xx}$  nicht mit dem Magnetfeld ändert, kann jedoch

<sup>3</sup>Die Debye-Abschirmlänge gibt die Distanz an, über sich die freie Elektronen umverteilen, um eine feste Ladung abzuschirmen.





**Abbildung 6.5:** (a) Hellfeld- und (b) Dunkelfeld-TEM-Bild eines (10 nm)  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ / (950 nm)  $\text{GaN}$ / (510 nm)  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ / 4H-SiC(0001)-HFETs, in dessen (Al,Ga)N-Puffer ein 30-periodisches [(1 nm)  $\text{AlN}$ / (10 nm)  $\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ ]-Übergitter eingebettet ist. Die Dichte der Fadenversetzungen nimmt durch defekt-/spannungsinduziertes Abknicken im MQW und an der  $\text{GaN}/(\text{Al,Ga})\text{N}$ -Puffergrenzfläche um einen Faktor 3 bzw. 7 ab. Der Schlaufencharakter reduziert die Versetzungsdichte zusätzlich, so daß die oberflächennahe Dichte lediglich  $1\text{--}2 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  beträgt.

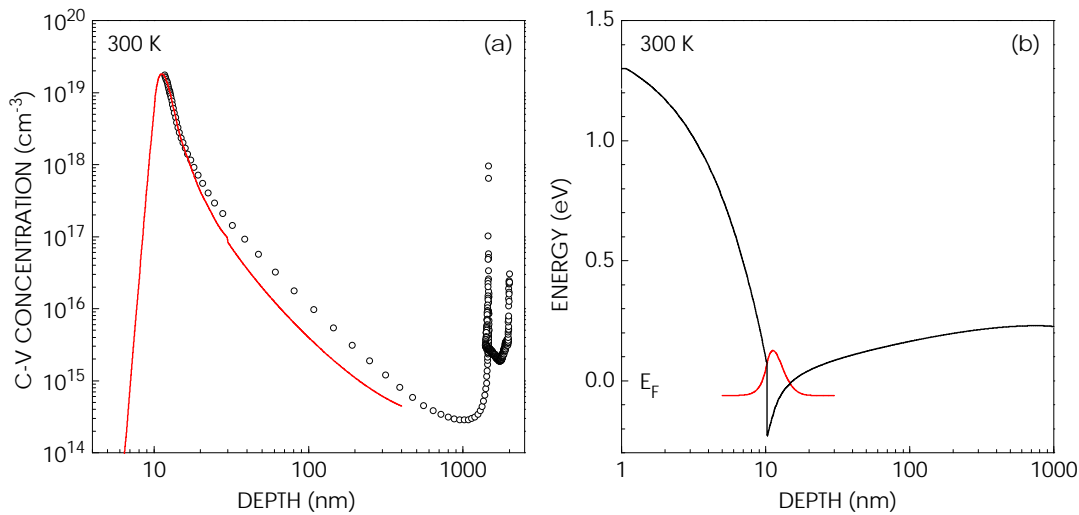
ein zusätzlicher paralleleitender Kanal in den HFET-Strukturen ausgeschlossen werden [153].<sup>4</sup>

Um einen direkten Beweis für die Existenz des 2DEGs zu erbringen, kann z. B. die tiefenabhängige 2DEG-Ladungsträgerkonzentration gemessen werden. Dieses geschieht mittels C-V-Technik, bei der die 2DEG-Konzentration aus der Messung der spannungsabhängigen Kapazität der HFET-Verarmungsschichten durch

$$N_{C-V} = \frac{C^3}{e\epsilon_0\epsilon} \frac{dV}{dC}, \quad z_{C-V} = \frac{\epsilon_0\epsilon}{C} \quad (6.4)$$

bestimmt wird, wobei V die Spannung an dem Hg-Schottky-Kontakt, C die gemessene differentielle Kapazität pro Einheitsfläche und  $\epsilon$  die dielektrische Konstante als Funktion der Tiefe  $z_{C-V}$  angibt [139]. Im Fall eines nicht-kompensierten und homogen dotierten Halbleiters stimmen C-V-Konzentration  $N_{C-V}$  und freie Ladungsträgerkonzentration überein. Unter der Annahme  $N_{C-V}(z) \cong n(z)$  ermöglicht die C-V-Technik die Bestimmung der Tiefe und der Ladungsträgerkonzentration des zweidimensionalen Elektronengases.

<sup>4</sup>In der Literatur wird eine parabolische Magnetfeldabhängigkeit von  $R_{xx}$  mit Paralleleitfähigkeit begründet.



**Abbildung 6.6:** (a) Gemessenes (Kreise) und simuliertes (Linie) C-V-Tiefenprofil eines (10 nm) Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>N/ (1.4 μm) GaN/ (510 nm) Al<sub>0.56</sub>Ga<sub>0.44</sub>N/ 4H-SiC(0001)-HFETs. Die Simulation gibt die maximale 2DEG-Konzentration von  $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  und die 2DEG-Halbwertsbreite von 4 nm gut wieder. [Man beachte das elektrische Verhalten ( $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) des hochdotierten (Al,Ga)N-Puffers und die Akkumulation von Ladungen an den Puffergrenzflächen (max.  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ )]. (b) Berechnetes Leitungsbandprofil derselben Struktur. An der Grenzfläche der (Al,Ga)N-Deckschicht entsteht ein 2DEG, dessen Elektron-Wellenfunktion in der dreiecksförmigen Bandverbiegung lokalisiert ist.

Die C-V- und Band-Profile der HFET-Strukturen wurden unter Beachtung der polarisationsbedingten elektrischen Felder und der Hintergrunddotierung durch das selbst-konsistente Lösen der Schrödinger/Poisson-Gleichung [154] berechnet. Das gemessene und berechnete C-V-Profil ist in Abb. 6.6(a) aufgetragen. Die Existenz des 2DEGs nahe der Oberfläche ist klar zu erkennen. Die Ladungsträgerkonzentration von  $n \sim 1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , dessen Breite 4 nm beträgt, verarmt im GaN-Puffer auf eine Hintergrunddotierung von  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  und steigt an der GaN/Al<sub>0.56</sub>Ga<sub>0.44</sub>N-Grenzfläche wieder auf  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  an. Die Akkumulation dieser festen Ladungen – in Hall-Messungen kann keine Paralleleitfähigkeit festgestellt werden – kann bei der Simulation der HFET-Beweglichkeiten vernachlässigt werden.

Abbildung 6.6(b) zeigt das Bandprofil eines (10 nm) Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>N/ (1.4 μm) GaN/ (510 nm) Al<sub>0.56</sub>Ga<sub>0.44</sub>N/ 4H-SiC(0001)-HFETs, dessen (Al,Ga)N-Puffer mit  $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  dotiert ist. Die Aktivierungsenergie der O-Donatoren beträgt in der Deckschicht  $E_A(\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}) = 30 \text{ meV}$  und im Puffer  $E_A(\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}) = 300 \text{ meV}$  [151]. Die Bindungsenergie des einzig besetzten 2DEG-Subbandes nimmt von 10 K bis Raumtemperatur von 81 meV auf 61 meV ab. Die Lokalisierung der simulierten Elektron-Wellenfunktion bestätigt die Existenz eines 2DEGs. Andererseits dringt die Wellenfunktion stark in die (Al,Ga)N-Barriere ein und kann durch ionisierte O-Donatoren gestreut werden. Die berechnete Ladungsträgerkonzentration der 2DEG-Schicht von  $7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit den aus Hall-Messungen ermittelten 2D-Konzentrationen (Fehler < 5%).

## 6.4 Simulation der HFET-Beweglichkeiten

Die HFET-Beweglichkeiten wurden unter Beachtung unterschiedlicher Streumechanismen simuliert, um deren limitierende Einflüsse isolieren zu können. Damit wird



eine sukzessive Optimierung der HFET-Herstellung ermöglicht. Bei tiefen Temperaturen begrenzt die (A) Defektstreuung, z. B. die Streuung an (A1) ionisierten und (A2) neutralen Störstellen, (A3) Versetzungen sowie (A4) Grenzflächenrauigkeiten und (A5) Legierungsfluktuationen die 2DEG-Beweglichkeit. Bei hohen Temperaturen dominieren (B) gitterinduzierte Streuprozesse wie z. B. Streuung an akustischen und optischen Phononen. Bei akustischen Phononen kann die Auslenkung der Gitteratome durch das (B1) Deformationspotential und das (B2) piezoelektrische Potential des Kristalls beschrieben werden. Die (B3) polar-optische Mode der Gitterschwingungen induziert durch Interaktion mit den elektrisch geladenen Atomrümpfen ein Dipolmoment, das bei Raumtemperatur die Ladungsträgerbeweglichkeiten in Kristallen limitiert. (B4) Wie bei den akustischen Moden kann auch die nicht-polar optische Mode die Bandlücken räumlich modulieren. (C) Ladungsträger-Ladungsträger-Streuprozesse werden nicht betrachtet, da sie nur bei sehr hohen Konzentrationen in Volumenkristallen wichtig sind. Generell wird eine Abnahme der 2DEG-Beweglichkeit mit zunehmender Elektronenmasse beobachtet.

(A1) Ionisierte Störstellen reduzieren durch Coulomb-Streuung die Beweglichkeit in einem 2DEG. Aufgrund der langreichweitigen Wechselwirkung müssen sowohl Störstellen im 2D-Kanal als auch Störstellen in der (Al,Ga)N-Deckschicht (*remote ionized impurity scattering*) betrachtet werden. (a) Aus der Streuung an ionisierten Störstellen, die sich in der Kanalregion befinden, kann eine 2DEG-Beweglichkeit  $\mu_{ii}$  abgeleitet werden, die im Fall eines entarteten zweidimensionalen Elektronengases [155] durch

$$\mu_{ii} = \frac{24\pi^3(\epsilon\epsilon_0)^2\hbar^3 n}{N_i Z^2 e^3 m^{*2} [\ln(1 + y_F) - y_F/(1 + y_F)]} \quad (6.5)$$

beschrieben wird (Brooks-Herring-Formel),<sup>5</sup> wobei  $y_F = 3^{1/3} 4\pi^{8/3} (\epsilon\epsilon_0)^2 \hbar^2 n^{1/3} / e^2 m^*$  ist. Die Ladungsträgerkonzentration wird zu  $n \approx n_s / d_{2DEG}$  genähert,  $N_i$  ist die Konzentration an ionisierten Störstellen,  $Ze$  die Störstellenladung und  $m^*$  die reduzierte Elektronenmasse. Im Gegensatz zum nicht-entarteten Fall ( $\mu_{ii} \sim T^{3/2}$ ) besteht keine explizite Temperaturabhängigkeit, sondern eine stärkere Abhängigkeit von  $m^*$ . (b) Auch die ionisierten Donatoren in der (Al,Ga)N-Deckschicht können in Abhängigkeit von dem Abstand  $z$  zum 2DEG dessen Beweglichkeit reduzieren. Für eine analytische Beschreibung muß jedoch angenommen werden, daß die Deckschicht  $\delta$ -förmig mit ionisierten Störstellen dotiert ist. Für den Fall, daß die an das 2DEG abgegebenen Elektronen kaum Einfluß auf die 2DEG-Schichtkonzentration haben, kann die zugehörige 2DEG-Beweglichkeit mit

$$\mu_{ri} = 16 z_0^3 \frac{e}{\hbar} \frac{n_s}{N_{ri}} \sqrt{2\pi n_s} \quad (6.6)$$

angegeben werden [156], wobei  $N_{ri}$  die Konzentration ionisierter Donatoren in der Deckschicht und  $z_0$  der Abstand der  $\delta$ -Dotierung zum 2DEG ist.  $z_0$  wurde so gewählt, daß sich die  $\delta$ -Dotierung in der Mitte der Deckschicht befindet.<sup>6</sup>

<sup>5</sup>Die bekannte Conwell-Weißkopf-Formel berücksichtigt keine Multi-Ionen-Streuung. In diesem Fall kommen sich die Streuzentren so nahe, daß ein ankommendes Elektron ein Potential von mehr als einem Streuzentrum 'fühlt'.

<sup>6</sup>Z. B. wurde für eine Deckschicht mit  $d_{(Al,Ga)N} = 9$  nm und einem 2DEG-Grenzflächenabstand von 2.5 nm  $z_0 = 7$  nm gesetzt.

(A2) Durch Impulsübertrag zwischen freien Elektronen und neutralen Gitteratomen wird die Elektronenbeweglichkeit durch

$$\mu_{ni} = \frac{e^3 m^*}{80\pi N_n \hbar^3 \epsilon \epsilon_0} \quad (6.7)$$

begrenzt, wobei  $N_n$  die Konzentration an neutralen Störstellen ist [155].

(A3) Die direkte Beeinflussung der Ladungsträgerbeweglichkeiten durch hohe Dichten an Fadenversetzungen wurde an epitaktischen GaN-Schichten intensiv untersucht [157, 158, 148]. Die versetzungsbedingte *in plane*-Beweglichkeit der Elektronen im GaN kann durch ein Modell [159] beschrieben werden, das auf der Coloumb-Streuung von freien Elektronen an geladenen Fadenversetzungen basiert. Das abstoßende Potential wird durch Elektronen aus dem Leitungsband aufgebaut, die durch tiefe Akzeptorzentren entlang der Versetzungslinie mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit eingefangen werden. Der minimale vertikale Abstand dieser Trap-Zustände entspricht der *c*-Gitterkonstante von hexagonalem GaN (5.1846 Å), was bei einer Versetzungsdichte von  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  einer Volumen-Trap-Dichte von  $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  entsprechen würde.

Leere Traps sind elektrisch neutral, während jeder besetzte Trap eine Elektronenladung trägt. Die statistische Trap-Besetzung kann durch Minimierung der freien Energie pro Trap-Zustand berechnet werden [157, 159]. Ist die Dichte an ionisierten Defekten kleiner als die Volumen-Trap-Dichte, werden alle freien Ladungsträger gebunden: das (Al,Ga)N wird semi-isolierend. Damit setzt die Versetzungsdichte eine untere Grenze für die zugängliche freie Ladungsträgerkonzentration. Die analytische Lösung der Poisson-Gleichung für Coulomb-Streuung an negativ geladenen vertikalen Versetzungslinien [160] ergibt für die transversale Beweglichkeitskomponente

$$\mu_{disl} = \frac{30\sqrt{2\pi}(\epsilon\epsilon_0)^2 d_{disl}^2 (kT)^{3/2}}{N_{disl} e^3 f^2 \lambda_d \sqrt{m^*}}, \quad (6.8)$$

wobei  $d_{disl}$  den Abstand zwischen den Akzeptorzentren (*dangling bonds*) entlang der Versetzungslinie,  $f$  die Besetzungswahrscheinlichkeit der Akzeptorzentren,  $N_{disl}$  die Dichte der Fadenversetzungen und  $\lambda_d$  die Debye-Abschirmlänge  $\lambda_d = \sqrt{\epsilon\epsilon_0 kT / e^2 n'}$  mit  $n'$  als Summe aus freien *und* gebundenen Ladungsträgern, ist [156]. Die Akzeptorzentren entfernen Elektronen aus dem Leitungsband und müssen deshalb in der Ladungsbilanz berücksichtigt werden. Im vorliegenden Fall beträgt die Dichte der Fadenversetzungen  $\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$  und die freie Ladungsträgerkonzentration im GaN-Puffer  $\sim 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , so daß (1) alle Elektronen eingefangen werden und (2) die Besetzungswahrscheinlichkeit der Akzeptor-Traps lediglich  $f = 0.35$  beträgt [157]. Gleichung 6.8 erklärt somit das Paradoxon, wonach die Elektronenbeweglichkeit mit steigender Ladungsträgerdichte durch die effektivere Abschirmung der streuenden Versetzungen zunimmt.

(A4) Grenzflächenrauigkeiten und (A5) Legierungsfluktuationen spielen in den vorliegenden Strukturen im Vergleich zu anderen Streumechanismen eine untergeordnete Rolle, weshalb sie hier nicht weiter betrachtet werden sollen [161, 156].

(B1,B2) Bei der Streuung von Ladungsträgern an akustischen Phononen beschreiben folgende Standardgleichungen, die streng genommen nur für nicht-entartete Elektronen zutreffen, die Ladungsträgerbeweglichkeiten in Abhängigkeit vom Deformations-

potential und dem piezoelektrischen Potential des (Al,Ga)N-Kristalls

$$\mu_{dp} = \frac{2\sqrt{2}\pi^{1/2}\hbar^4 ec_L}{3E_1^2 m^{*5/2} (kT)^{3/2}}, \quad (6.9)$$

$$\mu_{pe} = \frac{16\sqrt{2}\pi^{1/2}(\epsilon\epsilon_0)\hbar^2}{3eP^2 m^{*3/2} (kT)^{1/2}}, \quad (6.10)$$

wobei  $c_L$  die longitudinale elastische Konstante,  $E_1$  das Deformationspotential (eV),  $P = (e_{14}^2/c_L\epsilon_0)^{1/2}$  der piezoelektrische Kopplungskoeffizient und  $e_{14}$  die piezoelektrische Konstante ist.

(B3) Für Temperaturen über 100 K wird die Ladungsträgerbeweglichkeit im GaN durch Streuung an polar-optischen Phononen begrenzt. Da die Elektronenmasse sehr groß ist ( $m^* = 0.22$ ), beträgt die maximale transversale Elektronenbeweglichkeit bei Raumtemperatur  $\mu_{\perp} \approx 2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ . Die zur polar-optischen Streuung korrespondierende 2DEG-Beweglichkeit ergibt sich näherungsweise zu

$$\mu_{po} = \frac{4\pi\kappa\epsilon_0\hbar^2(1 - 5kT/E_g)}{eN_P m^* \sqrt{2m^* e E_0(1 + E_0/E_g)}}, \quad (6.11)$$

wobei  $\kappa = 1/(1/\kappa_{\infty} - 1/\kappa_0)$  die Kopplungskonstante,  $\kappa_{\infty} = \epsilon_{\infty}/\epsilon_0$  und  $\kappa_0 = \epsilon_s/\epsilon_0$  die hochfrequente bzw. statische Dielektrizitätskonstante,  $N_P = 1/[\exp(E_0/kT) - 1]$  die Planck-Funktion,  $E_0$  die polar-optische Phononenenergie und  $E_g$  die Bandkantenenergie ist [156]. (B4) Die zum Deformationspotential  $D_0$  zugehörige Beweglichkeit kann für  $kT \gg \hbar\omega_0$  durch

$$\mu_{npo} = \frac{2\sqrt{2}\pi\rho\hbar^4 e\omega_0^2}{3D_0^2 m^{*5/2} (kT)^{3/2}}, \quad (6.12)$$

beschrieben werden, wobei  $\omega_0$  die non-polar optische Phononen-Frequenz und  $\rho$  die Kristalldichte beschreibt. Dieser Streumechanismus ist jedoch bedeutend schwächer als andere Gitterstreuungsprozesse.

Bei entarteten Elektronengasen können hier die einzelnen beweglichkeitslimitierenden Komponenten (Gleichungen 6.5–6.12) mit Hilfe der Matthiessen'schen Regel zu einer totalen transversalen 2DEG-Beweglichkeit

$$\frac{1}{\mu_{\perp}} = \frac{1}{\mu_{ii}} + \frac{1}{\mu_{ri}} + \frac{1}{\mu_{ni}} + \frac{1}{\mu_{disl}} + \frac{1}{\mu_{dp}} + \frac{1}{\mu_{pe}} + \frac{1}{\mu_{po}} + \frac{1}{\mu_{npo}} \quad (6.13)$$

genähert werden, da die einzelnen Lebenszeiten  $\langle\tau\rangle = \mu m/e$  von der Energie unabhängig sind [155].<sup>7</sup> Tabelle 6.1 faßt alle Parameter für die Simulation der temperaturabhängigen 2DEG-Beweglichkeit zusammen.

In den Berechnungen wurden die  $n$ -Donatoren O, Si und As berücksichtigt, da sie auch in den SIMS-Messungen detektiert wurden. Die Donatoren werden in Abhängigkeit von ihrer Ionisierungsenergie aktiviert, wobei die Bestimmung des temperaturabhängigen Anteils von neutralen und ionisierten Störstellen der Forderung

<sup>7</sup>Prinzipiell ist diese Näherung jedoch für polar-optische Streuung nicht anwendbar.

nach Ladungsneutralität genügt. Unter Vernachlässigung der Akzeptoren ( $N_A = 0$ ) stimmt die Konzentration der ionisierten Donatoren mit den freien Elektronen gut überein ( $N_{D^+} \approx n$ ) und kann durch

$$\begin{aligned} \frac{n^2}{N_D - n} &= \frac{N_c}{g_D} \exp\left(\frac{-E_A}{k_B T}\right), \\ N_c &= 2 \left( \frac{2\pi m^* k_B T}{h^2} \right)^{3/2}, \\ E_A &= E_{A,0} \left[ 1 - (BN_D)^{1/3} \right], \quad B = \frac{4\pi}{3} r_s^3, \quad r_s = \frac{\epsilon \hbar^2}{m^* e^2} \end{aligned} \quad (6.14)$$

beschrieben werden [162], wobei  $N_c$  die Zustandsdichte,  $N_D$  die totale Donatorkonzentration,  $E_A$  die konzentrationsabhängige Aktivierungsenergie der Donatoren [163] und  $g_D$  den Entartungsgrad angibt.

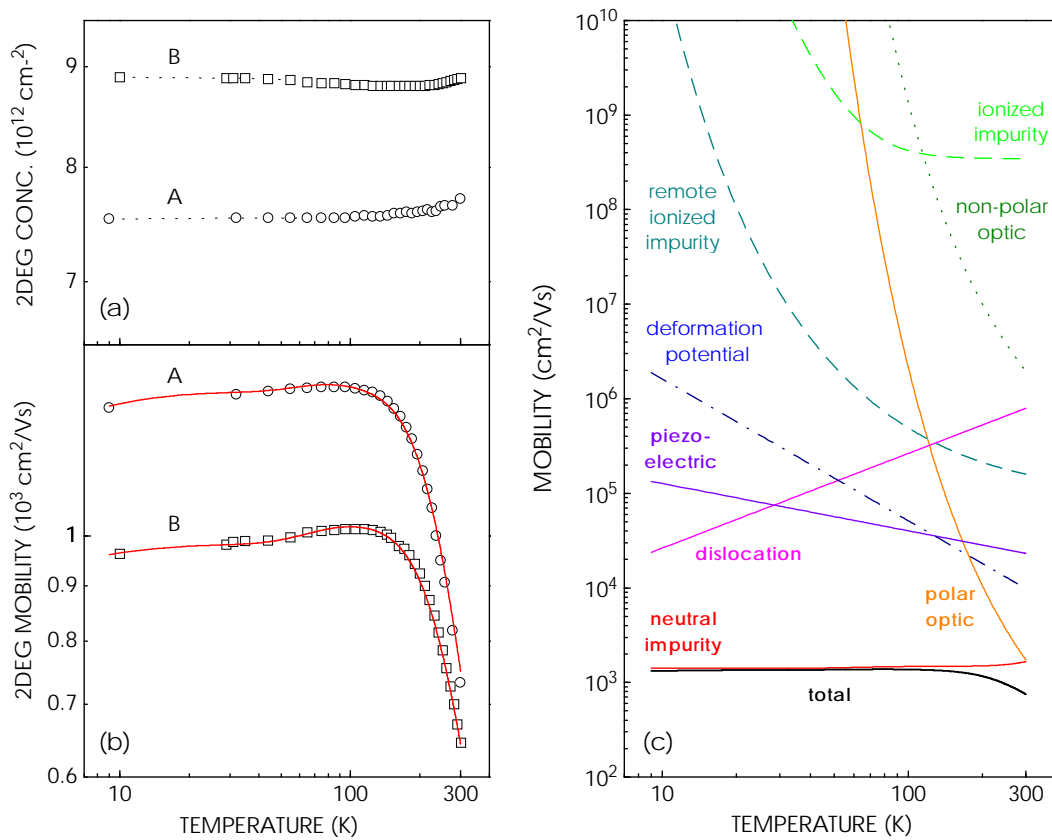
Die im GaN-Puffer dominierenden Verunreinigungen sind As- und Si-Donatoren, deren Ionisierungsenergie  $E_{A,0}^{As} \sim 0.25$  eV bzw.  $E_{A,0}^{Si} = 0.03$  eV beträgt. Für die totale Konzentration an ionisierten und neutralen Störstellen gilt somit  $N_i \approx N_{Si^+} + N_{As^+}$  bzw.  $N_n \approx (N_{Si} - N_{Si^+}) + (N_{As} - N_{As^+})$ . In der (Al,Ga)N-Deckschicht können die ionisierten O-Donatoren durch Coulomb-Streuung bei Temperaturen über 100 K das 2DEG beeinflussen, es gilt  $N_{ri} \approx N_{O^+}$ .

Als Basis zur Simulation der temperaturabhängigen HFET-Beweglichkeiten wurden die CV-Schichtkonzentration  $n_s$ , die SIMS-Dotierkonzentrationen  $N_O$ ,  $N_{As}$ ,  $N_{Si}$  und die TEM-Versetzungsdichten  $N_{disl}$  genutzt. Durch Variation dieser Parameter konnten die HFET-Beweglichkeiten mit einem Fehler von  $<2\%$  angepaßt werden. Tabelle 6.2 faßt die ermittelten Materialparameter zusammen.

Abbildung 6.7 zeigt die Schichtkonzentration (a) und die Beweglichkeit (b) zweier HFET-Strukturen, die unter nominell gleichen Wachstumsbedingungen hergestellt

**Tabelle 6.1:** (Al,Ga)N-Materialparameter zur Simulation der temperaturabhängigen HFET-Beweglichkeiten [5, 147, 151, 164, 128, 157].

Parameter	
$E_A^O(Al_{0.2}Ga_{0.8}N)$ (eV)	0.03
$E_A^O(Al_{0.56}Ga_{0.44}N)$ (eV)	0.3
$E_A^{Si}$ (eV)	0.03
$E_A^{As}$ (eV)	0.25
$m^*$	$0.22m_e$
$\epsilon_s$	9
$\epsilon_\infty$	5
$d$ (Å)	5.18
$f$	0.32
$E_0$ (eV)	0.0912
$E_1$ (eV)	8.3
$D_0$ (eV/unit strain)	$2 \times 10^{10}$
$c_L$ (N/cm <sup>2</sup> )	$2.65 \times 10^{11}$
$e_{14}$ (C/m <sup>2</sup> )	0.375



**Abbildung 6.7:** Temperaturabhängigkeit der (a) Schichtkonzentration und (b) der Beweglichkeit zweier HFET-Strukturen, deren  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ -Deckschicht 9 nm dick sind (offene Symbole). Aufgrund der konstanten 2DEG-Dichte in (a) kann Parallelleitfähigkeit vernachlässigt werden. Die simulierten [durchgezogene Linien in (b)] und gemessenen HFET-Beweglichkeiten stimmen sehr gut überein. (c) Temperaturabhängige Beweglichkeit der unterschiedlichen Streumechanismen. Auffallend ist der dominierende Einfluß der Streuung an neutralen As-Störstellen, die die Beweglichkeit bei  $N_{\text{As}} = 2.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  auf  $1400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  beschränkt. Die Streuung an ionisierten Störstellen nimmt infolge der Donatoraktivierung mit steigenden Temperaturen zu.

wurden. Die Simulation [durchgezogene Linien in (b)] offenbart, daß die Beweglichkeiten der HFET-Strukturen bei Raumtemperatur durch die polar-optische Streuung und durch die nahezu temperaturunabhängige Streuung an neutralen Störstellen limitiert werden. Sehr wahrscheinlich ist hierfür As als tiefe Störstelle verantwortlich. In Übereinstimmung mit den SIMS-Messungen begrenzt in der Simulation eine As-Konzentration von  $2.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  die maximale 2DEG-Beweglichkeit auf  $1500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ . Im Gegensatz dazu würden die Beweglichkeiten von HFET-Strukturen, die unter As-freien – aber sonst identischen – Wachstumsbedingungen hergestellt werden, bei Temperaturen unter 100 K nur durch die Streuung an geladenen Fadenversetzungen begrenzt werden. Demnach könnten 2DEG-Beweglichkeiten von  $\mu \sim 20000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  bei niedrigen Temperaturen realisiert werden. Bei Raumtemperaturen würde der polar-optische Streumechanismus die Beweglichkeiten auf  $\mu \sim 1400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  beschränken.

Aus den Simulationen kann abgeleitet werden, daß die Konzentration von tiefen As-Störstellen minimiert werden muß. Aus dem SIMS-Tiefenprofil in Abb. 6.3 kann vermutet werden, daß der As-Anstieg in 120 nm Tiefe durch die thermische Abstrahlung

**Tabelle 6.2:** Ermittelte Parameter aus der Simulation der temperaturabhängigen HFET-Beweglichkeiten.

Parameter	HFET A	HFET B
$n_s$ (cm <sup>-2</sup> )	$7.5 \times 10^{12}$	$8.8 \times 10^{12}$
$d_{2DEG}$ (nm)	5	5.8
$N_{disl}$ (cm <sup>-2</sup> )	$2 \times 10^8$	$2 \times 10^8$
$N_{As}$ (cm <sup>-3</sup> )	$2.5 \times 10^{16}$	$3.3 \times 10^{16}$
$N_{Si}$ (cm <sup>-3</sup> )	$1.3 \times 10^{15}$	$2.7 \times 10^{15}$
$N_O$ (cm <sup>-3</sup> )	$5 \times 10^{17}$	$5 \times 10^{17}$

der heißen Al-Quelle zustande kommt. Die As-Kontamination kann somit auch nicht signifikant durch die GaN-Synthesebedingungen ( $R_{AlGaN}$ ,  $T_{Sub}$ ,  $V/III$ ,  $x$ ) reduziert werden.

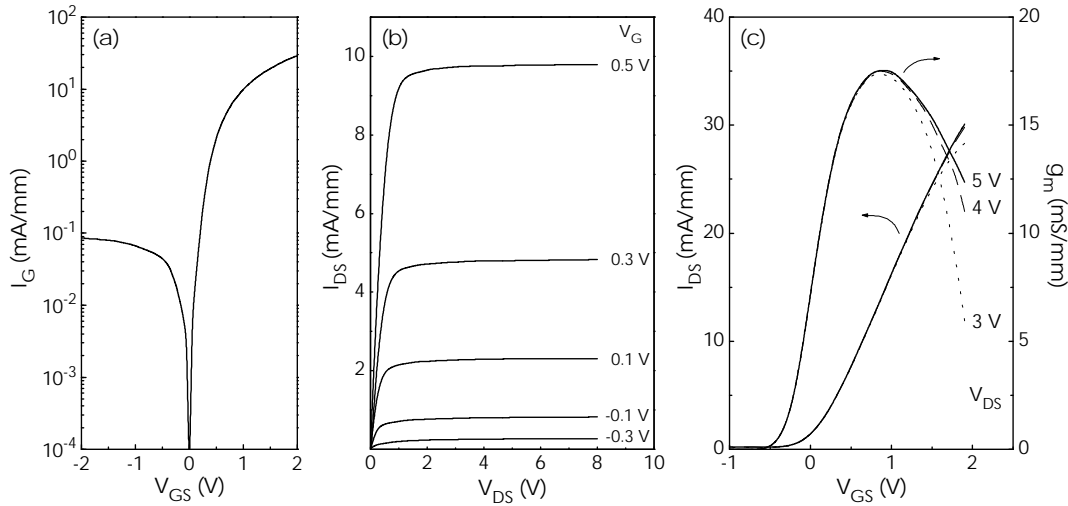
Andererseits offenbaren die Simulationen, daß in den vorliegenden HFET-Strukturen die Streuung der Ladungsträger an ionisierten Störstellen, nicht-polar optischen Phononen und akustischen Phononen selbst bei Raumtemperatur eine untergeordnete Rolle spielen. *Zusammenfassend folgt, daß die Fabrikation von GaN-basierenden HFETs mit höheren Beweglichkeiten nur in As-freien MBE-Systemen möglich ist.*

Für die plasma-unterstützte MBE konnte kürzlich gezeigt werden, daß GaN-Schichten, die mittels einer OXFORD-Plasmaquelle hergestellt werden, B-Konzentrationen von bis zu  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup> aufweisen [45]. Diese Fremdatome werden durch aktivierte  $N_x$ -Radikale aus dem BN-Tiegel der Plasmaquelle abgelöst und als isoelektronische Störstellen in das GaN eingebaut. Smorchkova *et al.* betrieben das neuste Modell einer EPI UNIBULB-Stickstoff-Quelle unter extrem niedriger Plasmaleistung ( $P \sim 90$  W,  $R_{GaN} \sim 100$  nm/h), um die Konzentration dieser Störstellen zu minimieren [165].

**Prozessierung und Eigenschaften der Feldeffekt-Transistoren** Nach der Charakterisierung wurden aus der HFET-Struktur 'A' (siehe Abb. 6.7) am Ferdinand-Braun-Institut in Berlin (Deutschland) Transistoren prozessiert. Zuerst wurde die Probe in HCl gereinigt, um das rückseitige In zu entfernen. Nach dem Maskieren mit einem photo-empfindlichen Lack und einer naßchemischen Reinigung (HCl:H<sub>2</sub>O 1:1) wurden die Ohmschen Kontakte durch Sputtern einer Ti/Al/Ti/Au-Schichtfolge (10/50/25/30 nm) aufgetragen und für 30 s bei 800°C ausgeheilt. Die Isolation der einzelnen HFETs erfolgte durch Mesa-Ätzung mittels eines BCl<sub>3</sub>- bzw. Cl<sub>2</sub>-Ionenstrahls. Nach dem Maskieren und Reinigen wurden Pt/Ti/Au-Gates (20/50/250 nm) mit der Länge  $L_G = 5$  µm und Breite  $W_G = 100$  µm aufgesputtert. Nach allen Prozeßschritten wurde der Lack mit *Lift off*-Technik mittels Aceton und Isopropanol entfernt. Das aktive Transistorgebiet zwischen Source und Drain wurde während der Prozessierung keinem Sauerstoff-Plasma ausgesetzt, da es sonst oft zu Ladungsträgerverarmungen kommt. Dennoch wurde ein großer Unterschied zwischen den aus TLM- und den Hall-Messungen bestimmten Schichtwiderständen festgestellt ( $R_s^{Hall} = 1/n\mu_e e = 1170$  Ω/sq,  $R_s^{TLM} = 2300$  Ω/sq). Dieses erklärt auch die vergleichsweise kleinen Stromdichten und Steilheiten, die gemessen wurden.

Die I-V-Charakteristik des Pt/Ti/Au-Schottky-Kontaktes wird in Abb. 6.8(a) gezeigt. In Vorwärtsspannung beginnt der Gate-Strom sofort zu sättigen, trotzdem ist der





**Abbildung 6.8:** (a) I-V-Charakteristik des Schottky-Kontaktes. (b) DC I-V-Charakteristik eines (Al,Ga)N/GaN-HFETs ( $L_G = 5 \mu\text{m}$ ,  $W_G = 100 \mu\text{m}$ ). Die *pinch off*-Spannung beträgt  $V_G = -0.3 \text{ V}$ . (c) DC-Leistungsverhalten für unterschiedliche Drain-Source-Spannungen. Die gemessene Steilheit hat sein Maximum bei  $17 \text{ mS/mm}$ .

Leckstrom bei  $V_{GS} = \pm 2 \text{ V}$  mehr als 300 mal kleiner. Für Gate-Spannungen von  $V_{GS} \leq -0.5 \text{ V}$  sättigt der Drain-Source-Strom fast vollständig.

Die statische (DC) I-V-Charakteristik der fabrizierten HFETs faßt Abb. 6.8(b) zusammen. Ein Drain-Strom von  $I_{DS} = 8 \text{ mA/mm}$  wird bei der Gate-Spannung  $V_{GS} = 0.5 \text{ V}$  erreicht. Der Kanal kann bereits bei  $-0.3 \text{ V}$  vollständig abgeschnürt werden (*pinch off*), für  $V_{DS} = 1 \text{ V}$  und  $V_{GS} = -0.3 \text{ V}$  beträgt der Drain-Source-Strom  $I_{DS} = 1 \mu\text{A}$ . Diese Beobachtung bestätigt nochmals das Fehlen jeglicher Parallellleitfähigkeit. Abb. 6.8(c) zeigt die gemessene elektrische Steilheit,<sup>8</sup> deren Maximum  $g_m = 17 \text{ mS/mm}$  bei  $V_{GS} = 0.9 \text{ V}$  erreicht wird. Da die Steilheit in der Sättigungsregion  $g_m$  mit der Kanalleitfähigkeit in der linearen Region  $g_D$  übereinstimmt [166], kann bei kleinen Drain-Spannungen  $V_D$  das Produkt aus Elektronenbeweglichkeit und Konzentration im Kanal  $\mu n_s$  im Transistor zu

$$g_D = \frac{I_D}{V_D} = e\mu n_s \frac{W_G}{L_G} \quad (6.15)$$

abgeschätzt werden [167], wobei sich – in Übereinstimmung mit den Schichtwiderständen – eine Abnahme um Faktor 2 gegenüber den Hall-Messungen ergibt.

Kleinere Gate-Längen konnten infolge der geringen Abmessungen der HFET-Probe nicht realisiert werden, da sub- $\mu\text{m}$  Gate-Längen eine Projektions-Photolithographie erfordern. Es wurden keine Messungen der RF-Charakteristik und der Grenzfrequenz  $f_m$  des Transistors durchgeführt, da die großen Gate-Längen  $L_G$  relativ kleine Grenzfrequenzen [166]

$$f_t = \frac{g_m}{2\pi C_{ein}} = \frac{\mu U_{DS}}{2\pi L_G^2} \quad (6.16)$$

von  $f_t \sim 1 \text{ GHz}$  erwarten lassen. Hierbei ist  $C_{ein} \approx C_{HFET}$  die Eingangskapazität des Transistors.

<sup>8</sup>transconductance  $g_m = |\partial I_D / \partial V_G|_{V_D=\text{const.}}$ ,  $[g_m] = \text{S/m} = \text{A/Vm}$

## 7 Bragg-Reflektoren

Dieses Kapitel beschreibt die erfolgreiche Synthese von GaN/(Al,Ga)N Bragg-Reflektoren mit Reflektivitäten von über 90%. Nach einer kurzen Einführung wird zunächst die zugrundeliegende Idee und das Schichtdesign dieser Strukturen erläutert. Der nachfolgende Abschnitt beschreibt die experimentelle Realisierung, die auf der exakten Bestimmung und Kontrolle der Herstellungsbedingungen basiert. Im letzten Abschnitt werden die strukturelle Analyse, die gemessenen und simulierten Reflektivitäten sowie die Reflektivitätsverluste der synthetisierten Bragg-Reflektoren vorgestellt.

### 7.1 Einführung

In den letzten Jahren konnte erstmals die kontinuierliche Raumtemperatur-Operation von blauen LDs und LEDs mit langen Lebensdauern demonstriert werden [7]. Die Realisierung solcher GaN-basierenden Bauelemente in Hohlraumresonatoren, wie z. B. blaue vertikal oberflächen-emittierende Laser (VCSEL – *vertical surface emitting laser*) und Leuchtdioden, sind Gegenstand aktueller Forschung und Entwicklung [168, 9, 169]. Im Vergleich zum kantenemittierenden Laser erhofft man sich vom VCSEL eine geringere Strahlendivergenz, spektrale Einmodigkeit und die Möglichkeit, zweidimensionale VCSEL-Felder (*arrays*) zu realisieren. Im speziellen führt die Nutzung solcher VCSEL-Arrays zur drastischen Reduzierung der Auslesezeit in hochdichten Speichermedien wie *compact discs* (CDs) und *digital versatile discs* (DVDs) und zur Erhöhung der Einlesegeschwindigkeit in der Laserdrucker-Technologie [9]. Auch Anwendungen in der integrierten Optoelektronik werden diskutiert [170].

Das Haupthindernis für die Raumtemperatur-Operation blauer VCSELs besteht im Kristallwachstum von elektrisch leitfähigen und hochreflektierenden Bragg-Spiegeln (DBR – *distributed Bragg reflector*), die normalerweise aus GaN und AlN bzw. aus GaN und  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  mit hohem Al-Gehalt  $x$  bestehen.<sup>1</sup>

Die Probleme, die beim epitaktischen Wachstum auftreten, haben ihre Ursache in (1) dem großen Unterschied zwischen ihren Gitterkonstanten (max. 2.4%), (2) dem großen Unterschied der thermischen Ausdehnungskoeffizienten zwischen GaN ( $5.6 \times 10^{-6}$  1/K) und AlN ( $4.2 \times 10^{-6}$  1/K) und (3) dem geringen Unterschied der Brechungsindices, z. B. für einen bei 400 nm maximal reflektierenden GaN/ $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}$ -DBR nur 0.24. Für den blauen Spektralbereich werden deshalb mehr als 30 Perioden benötigt, um Spiegel-Reflektivitäten von mehr als 90% zu ermöglichen.

<sup>1</sup>Bisher erzielte Reflektivitäten für GaN/(Al,Ga)N-DBRs:

	[168]	[171]	[172]	[158]	[173]	[174]	[88]
Wellenlänge (nm)	380 (400)	375 (442)	515	392.5	456	390	473
Reflektivität (%)	~90 (50)	95 (80)	~90	95	88	96±2	93
Periodenanzahl	37	18		20.5	14	35	30
Al-Gehalt (%)	15	20	100	100	100	34	41
Synthesemethode	MOCVD	MOCVD	RMBE	PAMBE	MOCVD	MOCVD	PAMBE

## 7.2 Vorbetrachtungen und Schichtdesign

Das DBR-Design basiert auf der periodischen Anordnung von GaN- und  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  als stark- bzw. schwach-brechende Schicht, die beide der Anforderung der konstruktiven Interferenz  $n_i d_i = \lambda/4$  genügen ( $\lambda/4$ -Kriterium), wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des Reflexionsmaximums,  $d_i$  die individuelle Schichtdicke und  $n_i$  der wellenlängenabhängige Brechungsindex ist. Erfüllen beide Schichttypen diese Bedingung, wird einfallende Strahlung der Wellenlänge  $\lambda$  verstärkt reflektiert. Es bildet sich ein sogenanntes Stoppband aus, dessen Reflexionsvermögen und spektrale Breite von der Periode bzw. dem Brechungsindexunterschied der beiden Schichttypen bestimmt wird.

**Theoretische Reflektivität** Zur genauen Bestimmung der DBR-Schichtdicken ist die Kenntnis der energieabhängigen Brechungsindices von GaN und  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  von entscheidender Bedeutung. In der vorliegenden Arbeit wurde  $n(E)$  für GaN aus Ellipsometriemessungen hinreichend genau extrapoliert [Abb. 7.1(a)]. Für  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  kann  $n(E)$  dagegen nur abgeschätzt werden, da (i) die Herstellung von ternären (Al,Ga)N-Schichten Legierungsfluktuationen sowie Gitter- und thermischen Verspannungen unterworfen ist, (ii) die aus Transmissionsmessungen ermittelten Bandkanten mit zunehmendem Al-Gehalt spektral verbreitern und (iii) die Energie der Bandkante nicht zwangsläufig linear mit dem Al-Gehalt ansteigt. Dieser Abweichungsfaktor oder Bowing-Parameter wurde mehrfach experimentell bestimmt, der Mittelwert beträgt  $b = 1.3 \pm 0.2$  eV [152, 175]. Unter Anwendung der empirischen Relation  $E_g(x) = xE_g^{\text{AlN}} + (1-x)E_g^{\text{GaN}} + bx(1-x)$ , nach der die  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Bandkante phänomenologisch eine quadratische Abhängigkeit zum Al-Gehalt besitzt [176], kann der Brechungsindex  $n$  als Funktion der Photonenenergie ( $E < E_g$ ) und des Al-Gehaltes ( $0 \leq x \leq 1$ ) zu

$$n^2(E, x) = \epsilon_r(E, x) = C(x) + A(x) \left( \frac{2 - \sqrt{1+y} - \sqrt{1-y}}{y^2} \right), \quad y = E/E_g(x) \quad (7.1)$$

angegeben werden [177], wobei die Funktionen

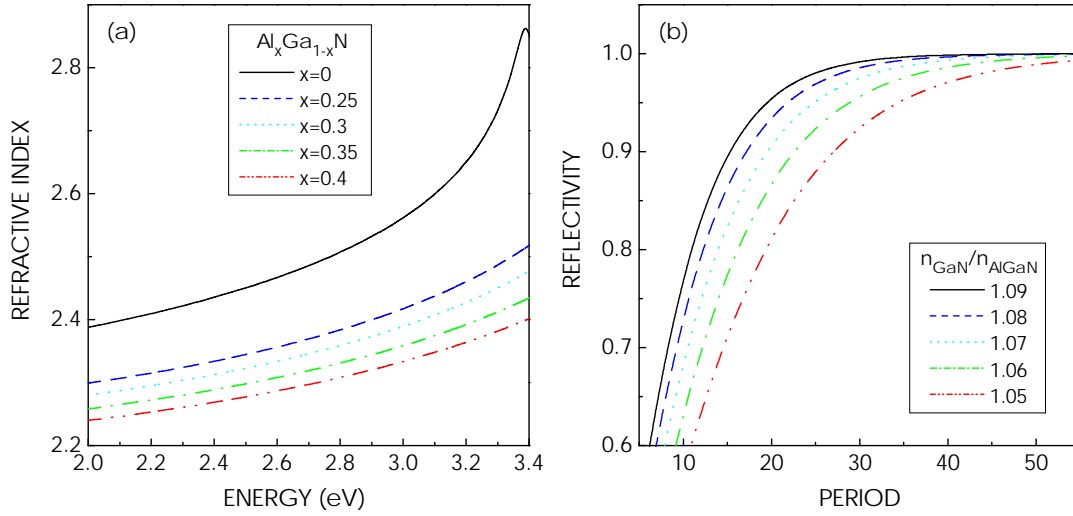
$$\begin{aligned} C(x) &= -(2.2 \pm 0.2)x + (2.66 \pm 0.12) \\ A(x) &= (3.17 \pm 0.39)\sqrt{x} + (9.98 \pm 0.27) \end{aligned}$$

in Ref. [152] bestimmt wurden.  $\epsilon_r$  ist die dielektrische Funktion und  $E_g$  die effektive Bandkante<sup>2</sup> von  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ . In Abbildung 7.1(a) ist  $n(E, x)$  für Al-Gehalte zwischen 25% und 40% aufgetragen.

Zur Realisierung von VCSEL-Strukturen müssen die DBRs elektrisch leitend sein, wodurch der Al-Gehalt von (Al,Ga)N auf maximal 40% begrenzt wird (siehe Kapitel 6). Da die Variation des Brechungsindex für GaN/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -basierende Bragg-Reflektoren ( $x \leq 0.4$ ) kleiner als für das GaAs/AlAs-Materialsystem ist,<sup>3</sup> muß die Periodenzahl der GaN/(Al,Ga)N-Spiegel erhöht werden [174]. Für Bragg-Spiegel ohne

<sup>2</sup>Die effektive Bandkante ist hier definiert als diejenige Photonenenergie, bei der der Absorptionskoeffizient des Materials  $10^{4.8} \text{ cm}^{-1}$  beträgt.

<sup>3</sup>Nahe der Bandkantenenergie von GaN bzw. GaAs hat GaN/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$  bzw. GaAs/AlAs einen Brechungsindexsprung von  $\Delta n = 0.14$  bzw.  $\Delta n = 0.56$ .



**Abbildung 7.1:** (a) Energieabhängigkeit der (Al,Ga)N-Brechungsindizes für unterschiedliche Al-Gehalte. (b) Theoretische Reflektivität des Stopbandes in Abhängigkeit vom wellenlängenabhängigen Brechzahlunterschied  $n_{\text{GaN}}/n_{(\text{Al,Ga})\text{N}}$ .

Grenzflächenrauigkeit und ideal angeordneten  $\lambda/4$ -Schichtpaaren kann die Reflektivität in Abhängigkeit von der Periodenanzahl  $P$  angegeben werden als

$$R = \left[ \frac{1 - n_s (n_{\text{GaN}}/n_{\text{AlGaN}})^{2P}}{1 + n_s (n_{\text{GaN}}/n_{\text{AlGaN}})^{2P}} \right]^2, \quad (7.2)$$

wobei  $n_s$ ,  $n_{\text{GaN}}$  und  $n_{\text{AlGaN}}$  den Brechungsindex des Substrates, von GaN bzw. (Al,Ga)N im spektralen Zentrum des Stopbandes angibt. Im blauen Spektralbereich werden für Reflektivitäten von über 90% typischerweise 35–50 Perioden benötigt [Abb. 7.1(b)]. Für einen bei 400 nm reflektierenden GaN/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ -DBR ( $n_{\text{GaN}}/n_{\text{AlGaN}} = 1.07$ ) müssen somit für eine theoretische Reflektivität von 95% (98%) mindestens 26 (34) Schichtpaare abgeschieden werden.

**DBR-Spannungskompensation** Im Vergleich zum GaAs/AlAs-Materialsystem haben GaN/(Al,Ga)N-basierende Bragg-Reflektoren eine bis zu 17mal höhere Verspannung. Die hohen Gitterfehlانpassungen und Depositionsdicken bedingen deshalb ein Relaxieren der akkumulierten Verspannungen unter zusätzlichem Einbau von Versetzungen und ein Aufräumen der Wachstumsfront. Die Herstellung von spannungskompensierten Bragg-Reflektoren umgeht das Problem der hohen Gitterfehlانpassungen zwischen DBR und Puffer, indem ein  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Puffer abgeschieden wird, dessen Al-Gehalt  $x_{\text{AlGaN}}^P$  dem mittleren Al-Gehalt des DBRs  $\bar{x}$  entspricht.

Die Gitterkonstanten des relaxierten (Al,Ga)N-Puffers  $c_{\text{AlGaN}}^P$  und  $a_{\text{AlGaN}}^P$  sowie die mittleren Gitterkonstanten des Übergitters  $\bar{c}$  und  $\bar{a}$  seien aus Röntgenbeugungsprofilen eindeutig bestimmbar. Die Verspannung in quasi-spannungskompensierten Bragg-Reflektoren kann durch drei Spannungs-Szenarien wie folgt definiert werden:

(1) **Vollständig kohärentes SL:** Dieser Idealfall beschreibt das Übereinstimmen aller *in plane*-Gitterkonstanten  $a_{\text{GaN}} = a_{\text{AlGaN}} = a_{\text{AlGaN}}^P$ . Zusätzlich fordert die Spannungskompensation [Netto-Verspannung  $\epsilon_{\text{netto}} = \int dz \epsilon(z) = 0$ ] zwischen Bragg-Reflektor und (Al,Ga)N-Puffer  $\bar{a} = a_{\text{AlGaN}}^P$  und somit auch  $\bar{c} = c_{\text{AlGaN}}^P$ . Damit kann  $x_{\text{AlGaN}}$ ,  $d_{\text{GaN}}$  und  $d_{\text{AlGaN}}$  eindeutig bestimmt werden.

(2)a **Freistehendes SL:** Ein freistehendes Übergitter ist eine in sich kohärente Mehrschichtstruktur mit  $\bar{a} = a_{\text{GaN}} = a_{\text{AlGaN}}$ . Für die Verspannung gilt jedoch  $\epsilon_{\text{netto}} \neq 0$ , woraus  $\delta = \bar{a} - a_{\text{AlGaN}}^P \neq 0$  folgt. Da  $\delta$  klein ist, bleibt der DRB vollständig kohärent, aber verspannt. Für seine neue *in plane*-Gitterkonstante gilt  $\bar{a}_{\text{DBR}} = a_{\text{AlGaN}}^P$ . Anders ausgedrückt, weicht der wirkliche Al-Gehalt der (Al,Ga)N-Pufferschicht nur leicht von dem gewünschten Al-Gehalt ab ( $\leq 3\%$ ), bleibt das Übergitter in sich kohärent verspannt.

(2)b **Partiell relaxiertes SL:** Wie für das freistehende Übergitter gilt auch hier  $\bar{a} = a_{\text{GaN}} = a_{\text{AlGaN}}$ . Die Verspannung  $\delta = \bar{a} - a_{\text{AlGaN}}^P \neq 0$  ist jedoch so groß, daß der DBR als Ganzes relaxiert, es gilt  $\bar{a} \neq a_{\text{AlGaN}}^P$ . Folglich ist das Übergitter inkohärent, aber frei von Verspannung ( $\epsilon_{\text{netto}} = 0$ ).

Bei der Berechnung der strukturellen Parameter wurde demnach wie folgt vorgegangen: Für das gewünschte spektrale Reflexionsmaximum und den Al-Gehalt können die jeweiligen Schichtdicken des Bragg-Spiegels durch das  $\lambda/4$ -Kriterium und die daraus folgende mittlere *in plane*-Gitterkonstante  $\bar{a}$  durch die Minimierung der totalen Verspannungsenergie  $E = \frac{1}{2} \sigma_{ij} \epsilon_{ij} d$  mit  $[\partial E / \partial \epsilon]_{\bar{a}} = 0$  eindeutig bestimmt werden. Dann wird der Al-Gehalt des relaxierten (Al,Ga)N-Puffers so eingestellt, daß seine *in plane*-Gitterkonstante mit  $\bar{a}$  übereinstimmt.

**Schichtdickenbestimmung** Die exakte Bestimmung der GaN- und (Al,Ga)N-Schichtdicken spielt eine essentielle Rolle für die Herstellung von hochreflektierenden Bragg-Spiegeln. Im speziellen hat die in Abschnitt 5.3 beschriebene lokale Vicinalität der Grenzflächen einen großen Einfluß auf RHEED- und Reflektivitätsmessungen.

(A) **RHEED:** Die Oszillationsperiode des reflektierten RHEED-Strahls (*specular spot*) gibt die Depositionszeit einer (Al,Ga)N-Monolage an. Daraus kann die Wachstumsrate des Materials extrapoliert werden. Die pyramidenförmige Undulation der Schichten erhöht jedoch die Wahrscheinlichkeit des Stufenflusses an den Flanken, da die Terrassenbreiten stark abnehmen. Im Resultat nimmt die Oszillationsperiode des Specular Spots ab, was die Schichtdickenbestimmung mittels RHEED verfälscht.

(B) **Reflektivität:** Bei optischen Messungen verkürzt sich die effektive Schichtdicke auf  $d_i^{\text{eff}} = d_i \cos(\theta_i)$ , wobei  $\theta_i$  der Ausbreitungswinkel in der  $i$ -ten Schicht ist. Grenzflächenundulationen können als lokale Verkipfung  $\phi$  des einfallenden Weißlichtstrahles aufgefaßt werden. (i) Die reflektierte Strahlung des Bragg-Spiegels findet nicht mehr ausschließlich senkrecht zur Probe statt, sondern divergiert mit dem Verkipfungswinkel. Die normal zur Oberfläche gemessene Reflektivität nimmt ab. Dieser Effekt verstärkt sich, da das Reflexionsverhältnis  $q_r$

(Transmissionsverhältnis  $q_i$ ) in den einzelnen Schichten  $i$  mit dem Einfallswinkel  $\phi$  ansteigt (fällt). (ii) Verkippte DBR-Grenzflächen bewirken eine zusätzliche Schichtdickenvariation und somit spektral unterschiedliche Positionen der lokalen Stoppbänder. Als Produkt resultiert ein Stoppband aus vielfach interferierenden lokalen Stoppbändern, dessen spektrale Breite und Reflektivität mit dem Verkippfungswinkel abnimmt.

### 7.3 Synthese und Eigenschaften

Die Realisierung von Bragg-Spiegeln mit hohen Reflektivitäten erfordert die *parallele und exakte Kontrolle* der individuellen Schichtdicken und Brechungsindices, die wiederum durch unterschiedliche Synthesebedingungen – wie z. B. den Al-Gehalt, die Wachstumsraten und die Grenzflächenmorphologie – eingestellt werden können. Aufgrund dieser engen Verknüpfung sollen in diesem Abschnitt die Wachstumsbedingungen und DBR-Eigenschaften auch parallel diskutiert werden. Mit Hilfe der Analyse und Simulation von Röntgenbeugungsprofilen und Reflektivitätsspektren können die Wachstumsparameter derart abgestimmt werden, so daß die Synthese von Bragg-Spiegeln mit Reflektivitäten von über 90% bei einer gewünschten Wellenlänge ermöglicht wird.

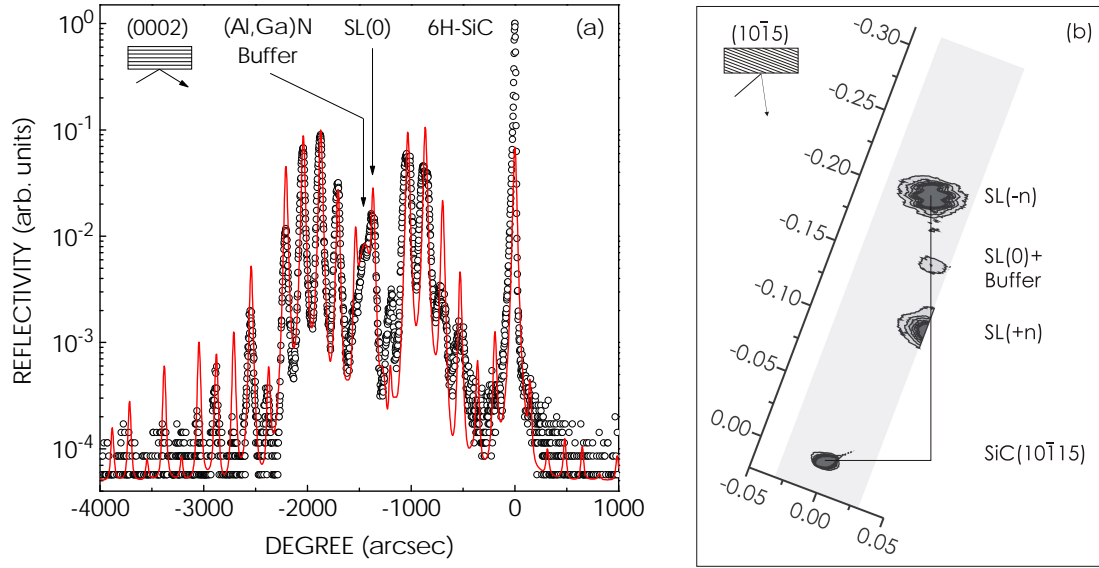
Es wurde eine Serie von Bragg-Reflektoren hergestellt, deren Stoppbandzentrum zwischen 400 nm und 536 nm liegt. Tabelle 7.1 faßt die wichtigsten DBR-Parameter zusammen.

Alle Spiegel, bis auf Probe M2425, wurden unter stöchiometrischen Wachstumsbedingungen  $V/III \approx 1$  hergestellt. Lange Syntheszeiten und hohe Substrattemperaturen resultieren bei stöchiometrischen Wachstumsbedingungen in eine Ausbildung von undulierten Grenzflächen (vgl. Kapitel 5), die eine über den ganzen Spiegel verteilte, lokale Vicinalität der Grenzflächen induziert und sich als  $\mu\text{m}$ -Rauhigkeit auf der DBR-Oberfläche manifestiert. Das Reflexionsvermögen von NUV- und sichtbarer Strahlung wird nur durch  $\mu\text{m}$ -Rauhigkeiten der Grenzflächen reduziert, es besteht also für eine vergleichbare Periodenanzahl  $P$  eine direkte Korrelation von *rms*-Rauhigkeit ( $100 \mu\text{m}^2$ ) und Reflektivität  $R$ .

**Tabelle 7.1:** Wachstumsparameter und Kenngrößen aller hergestellten DBR-Strukturen

	M2417	M2418	M2420	M2422	M2425
$d_{\text{GaN}}$ (nm)	42	53	36	44	40.6
$d_{\text{AlGaIn}}$ (nm)	57	61	44	45	44.0
$x$	0.33	0.33	0.3	0.3	0.355
$P$	35	50	19	35	35
$V/III$	1.2	0.9	1	0.9	2.3
Probenrotation	ja	nein	nein	ja	ja
$rms(100 \mu\text{m}^2)$ (Å)	157	200	96	223	63
$\Delta\theta[SL(-3)]$ (arcsec)	41.5	25.7	33.6	35.6	40.1
$R_{\text{max}}$	0.78	0.66	0.64	0.65	0.935
$E(R_{\text{max}})$ (nm)	480	536	400	440	418





**Abbildung 7.2:** (a)  $\omega-2\theta$ -Röntgenbeugungsprofil des Bragg-Reflektors M2417 um den (0002)-Reflex von (Al,Ga)N. Die Vielzahl der detektierten Übergitterreflexe bestätigt die hohe Perodizität des Bragg-Reflektors. Die dynamische Simulation (durchgezogene Linie) zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment (offene Punkte). Beachtenswert sind die nahezu übereinstimmenden *out of plane*-Gitterkonstanten des  $\text{Al}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N}$ -Puffers und des SL(0)-Reflexes, der dem mittleren Al-Gehalt des DBRs entspricht. (b) Zweidimensionale Abbildung des reziproken Gitters derselben Heterostruktur um den asymmetrischen  $(10\bar{1}5)$ -Reflex von (Al,Ga)N. Die *in plane*-Gitterkonstanten des DBR-Übergitters und des relaxierten  $\text{Al}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N}$ -Puffers stimmen sehr gut überein, woraus auf eine spannungskompensiertes bzw. freistehendes Übergitter geschlossen werden kann.

Im Gegensatz dazu stehen die Dickenfluktuationen auf atomarer Skala. Atomar glatte Grenzflächen können nur unter leicht Ga-stabilen Bedingungen synthetisiert werden, d. h. die Halbwertsbreite der Übergitter-Satelliten wie z. B.  $\Delta\theta[\text{SL}(-3)]$  nimmt für kleine V/III-Verhältnisse ab. Den stärksten Einfluß hat jedoch das V/III-Verhältnis, das die Ausbildung von gewellten Grenzflächen reduzieren kann. Die Deposition des Bragg-Reflektors M2425 erfolgte deshalb unter  $\text{NH}_3$ -reichen Bedingungen.

**Röntgenbeugung** Zur Bestimmung des Al-Gehaltes im (Al,Ga)N-Puffer und im Übergitter, der individuellen Schichtdicken und Verspannungen wurden die Bragg-Spiegel mit Hilfe von symmetrischen  $\omega-2\theta$ -Röntgenbeugungsprofilen als auch asymmetrischen 2D-Abbildungen des reziproken Gitters (*x-ray reciprocal space mapping*) im  $(10\bar{1}5)$ -Reflex analysiert. Abbildung 7.2(a) zeigt ein typisches  $\omega-2\theta$ -Profil eines 35-periodischen GaN/(Al,Ga)N-DBRs um den (0002)-Reflex von GaN. Neben dem (0006)-Reflex des SiC-Substrates treten eine Vielzahl von Übergitter-Satelliten auf. Die kinematische Analyse der Satellitenabstände liefert in Verbindung mit den Wachstumszeiten die exakte DBR-Periode  $P = d_{\text{GaN}} + d_{\text{AlGaIn}}$ .

Die dynamische Simulation [100] der (0002)-Röntgenbeugungsprofile basiert auf dem oben beschriebenen Modell eines freistehenden Übergitters [88]. Da die Kenntnis der exakten Verspannungen in der DBR-Struktur essentiell für eine eindeutige Simulation ist, wurde zuerst der Al-Gehalt und Relaxationsgrad der (Al,Ga)N-Schichten und die thermischen Restverspannung der GaN-Schichten berechnet. Durch Variation der

GaN- und (Al,Ga)N-Schichtdicken konnten (unter Beibehaltung der DBR-Periode) die simulierten Röntgenprofile an die gemessenen Profile angepaßt werden.

In Abbildung 7.2(b) wird das X-ray Mapping um den (10 $\bar{1}$ 5)-Reflex von (Al,Ga)N gezeigt. Aus dem Mapping kann direkt entnommen werden, daß sowohl der Puffer als auch der DBR die gleiche *in plane*-Gitterkonstante haben. Folgerichtig bestätigt auch das symmetrische Profil derselben Struktur in (a) ein gutes Übereinstimmen der *out of plane*-Gitterkonstanten des Puffers und des DBRs. Genaugenommen gilt jedoch  $\bar{a} \approx a^P$ , aber  $\bar{c} < c^P$ , woraus auf eine leicht tensile Verspannung des freistehenden Übergitters geschlossen werden kann.

**Optische Reflektivität** Die Methode der Transfer-Matrix [178] wurde genutzt, um die theoretische Reflektivität  $R_{theo}$  eines nicht-absorbierenden Bragg-Reflektors zu berechnen. Die Elemente der vier-komponentigen Matrix geben dabei die *l*-te Schicht an. Durch *m*-fache Matrizen-Multiplikation wird die Vielfachinterferenz einer Multischicht-Struktur mit der Periode *m* simuliert:

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \prod_{l=1}^m \begin{bmatrix} \cos(d) & \frac{i \sin(d)}{n_l} \\ i n_l \sin(d) & \cos(d) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ n_{sub} \end{bmatrix} \quad (7.3)$$

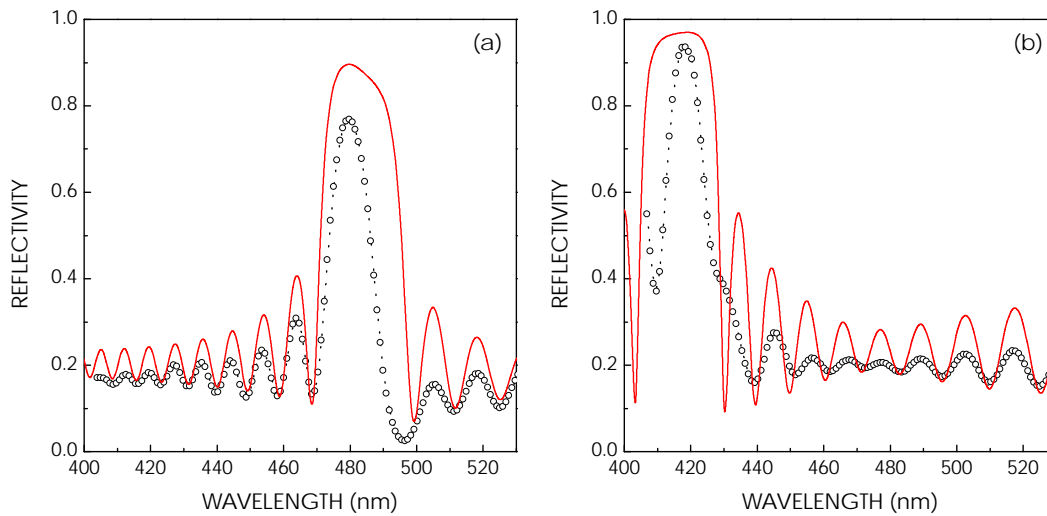
mit

$$d = \frac{\lambda}{4n}, \quad Y = \frac{C}{B}, \quad R_{theo} = \left( \frac{1 - Y}{1 + Y} \right) \overline{\left( \frac{1 - Y}{1 + Y} \right)}, \quad (7.4)$$

wobei *d* die  $\lambda/4$ -Schichtdicken,  $\lambda$  das Zentrum der Stoppband-Wellenlänge, *n* die Brechungsindices und *Y* die optische Admittanz beschreibt.

Als Ausgangspunkt der Analyse dient die Messung der Stoppband-Reflektivität mittels eines FILMETRICS-Spektrometers (Modell F30, 400-850 nm). In Abbildung 7.3 werden die gemessenen und simulierten Reflektivitätsspektren von zwei Bragg-Reflektoren präsentiert, die unter stöchiometrischen (a) und NH<sub>3</sub>-reichen (b) Bedingungen hergestellt wurden. Die Verkipfung der DBR-Schichten bedingt die spektrale Verschmälerung des Stoppbandes in (a) bei 480 nm und in (b) bei 418 nm auf  $15 \pm 3$  nm. Die spektrale Position der Stoppbänder variiert auf einer Fläche von 1 cm<sup>2</sup> um weniger als 3 nm.

Durch sorgfältige Kalibrierung der Wachstumsraten und Optimierung der Wachstumsbedingungen konnten die maximalen Reflektivitäten von 78% in (a) auf 94% in (b) erhöht werden. Diese Verbesserung hat folgende Ursachen: Zum einen erfüllen die individuellen Schichtdicken in (b) genau das  $\lambda/4$ -Kriterium, wodurch die theoretisch realisierbare Reflektivität maximiert wird. Dies ist aus der rechteckigen Form des simulierten Stoppbandes sofort ersichtlich. Zum anderen kann dieser Anstieg aus den NH<sub>3</sub>-reichen Wachstumsbedingungen erklärt werden, da der Reflektivitätsverlust  $R_{theo} - R_{exp}$  im Vergleich zu (a) signifikant reduziert werden konnte. Darüber hinaus blieb die mittels RHEED beobachtete Wachstumsfront während der kompletten Synthese atomar glatt, was auf eine vollständige Spannungskompensation des DBRs schließen läßt.



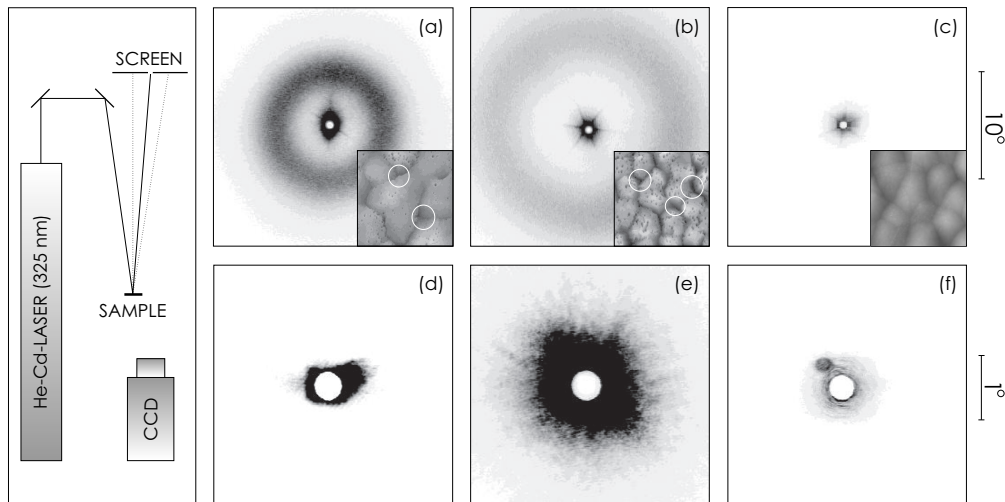
**Abbildung 7.3:** Gemessene (offene Punkte) und berechnete (durchgezogene Linien) Reflektivitäten der Bragg-Reflektoren M2417 (a) und M2425 (b). Die für die Simulation genutzten Brechungsindizes  $n(\lambda)$  wurden für SiC(0001) und GaN mittels Ellipsometriemessungen bestimmt und für (Al,Ga)N extrapoliert (Glg. 7.1), der Brechungsindexsprung am Stoppband beträgt  $\Delta n = 0.1458$  (a) bzw.  $\Delta n = 0.1981$  (b).

**Laserstreuung** Die Auswertung der DBR-Eigenschaften weist darauf hin, daß die Reflektivität mit zunehmender Grenzflächenrauigkeit abnimmt. So haben die Bragg-Spiegel M2418 und M2422 eine ca. 20% geringere Reflektivität, als die theoretische Reflektivität für die jeweiligen DBR-Parameter zuläßt. Für den direkten Nachweis dieses Reflektivitätsverlustes wurden alle Strukturen mittels Laserstreuung untersucht.

Diese kontaktlose, reinraumkompatible und schnelle Meßmethode liefert semi-quantitative Informationen über die statistische Rauigkeit von mm-großen Kristalloberflächen [179]. Speziell bei optischen Komponenten, wie z. B. Bragg-Spiegeln, ermöglicht die Methode eine direkte Abbildung der Oberflächenrauigkeit und somit eine Abschätzung der Streuverluste. Diese sogenannte *Speckle*-Spektroskopie [180] ist eine wichtige Ergänzung zu konventionellen Analysetechniken, da die Atomkraftmikroskopie quantitative Oberflächeninformationen im  $\mu\text{m}$ -Bereich und die optische Mikroskopie nur qualitative Informationen liefert.

Ein unfokussierter He-Cd-Laserstrahl ( $\lambda = 325 \text{ nm}$ ,  $\varnothing 2 \text{ mm}$ ) wird in Reflexion an der Probenoberfläche (diffus) gestreut und auf einem Schirm abgebildet (siehe Abb. 7.4 links). Die zurückgestreute Strahlung ist nur vom Einfallswinkel und der Oberflächenrauigkeit abhängig. Im folgenden soll nur die Streuung an periodischen Strukturen, die größer als die Laserwellenlänge sind, diskutiert werden. Die dabei auftretenden Beugungseffekte können deshalb in guter Näherung durch das Modell der Strahlenoptik wiedergegeben werden.

Die theoretische Stoppband-Reflektivität nimmt für Abweichungen der  $\lambda/4$ -Schichtdicken bei konstanter Periodendicke nur geringfügig ab. Als Beispiel nimmt die maximale Reflektivität für unangepaßte Schichtdicken, wie z. B.  $d^a = (d_{\lambda/4}^a + 10) \text{ nm}$  und  $d^b = (d_{\lambda/4}^b - 10) \text{ nm}$  für  $480 \text{ nm}$ , nur um 2% zur  $\lambda/4$ -Reflektivität ab, dessen spektrale Breite jedoch um fast 35%. Im Gegensatz dazu können Streuverluste durch  $\mu\text{m}$ -große Grenzflächenrauigkeiten, wie z. B. thermisch geätzte Facetten, Plateau-Morphologien und hexagonale Pyramiden, die Reflektivität stark reduzieren. Es ist somit unerlässlich, die Einflüsse 'Schichtdickenabweichung' und 'Grenz-



**Abbildung 7.4:** Winkelabhängige Intensität (invertiert) der Laserstreuung an den Bragg-Spiegeln M2418 (a), M2422 (b) und M2425 (c). Die eingefügten AFM-Bilder zeigen die DBR-Oberfläche auf einem  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ -Ausschnitt, deren totale Höhe 200 nm beträgt. Bei allen Proben wird ein hexagonales Beugungsmuster beobachtet, in (a) und (b) kommt es zusätzlich zur Ausbildung eines diffusen Ringes, der nicht-orientierten Facettenflächen (durch Kreise markierte Oberflächenbereiche) mit einem Winkel von  $\sim 5^\circ$  (a) bzw.  $\sim 10^\circ$  (b) entspricht. Die primäre Laserreflexion wurde ausgeblendet ( $\varnothing 5 \text{ mm}$ ). (d), (e) und (f) zeigen die Beugungsbilder von mechanisch poliertem SiC,  $\text{H}^*$ -geätztem SiC und (f) epitaktischem GaAs. Im Vergleich zu (a) bis (c) sind die Streuverluste der Substrate vernachlässigbar klein. [Man beachte die unterschiedlichen Winkelskalierungen für (a)–(c) und (d)–(f). Der schematische Aufbau wird links gezeigt.]

flächenrauigkeit' voneinander zu trennen. Da die Schichtdickenabweichungen bereits in der Reflektivitäts-Simulation berücksichtigt werden, werden im folgenden die Reflektivitätsverluste durch  $\mu\text{m}$ -Grenzflächenrauigkeiten diskutiert.

Das Beugungsmuster einer GaAs-Epitaxieschicht und eines mechanisch polierten 6H-SiC(0001)-Substrates in den Abbildungen 7.4(f) und 7.4(d) bestätigen die makroskopische Glattheit der reflektierenden Oberflächen, da der Durchmesser des gestreuten Laserstrahls kaum zunimmt. Dagegen scheint in Abb. 7.4(e) die Rauigkeit von  $\text{H}^*$ -geätztem SiC(0001) zuzunehmen. Die Ursache dafür liegt in der Ausbildung von  $\mu\text{m}$ -großen Ätzgruben auf der Substratoberfläche. Mikroskopisch betrachtet nimmt die Rauigkeit der  $\text{H}^*$ -präparierten Oberflächen dagegen ab (vgl. Kapitel 3).

Die winkelabhängigen Beugungsintensitäten von drei Reflektor-Oberflächen werden in Abb. 7.4(a) bis (c) gezeigt. Bei allen Strukturen ist der primär gestreute Laserstrahl stark aufgeweitet, zusätzlich werden bis zu einem Winkel von  $2^\circ$  eine sechszählige Symmetrie und im Winkelbereich von  $5 \pm 1^\circ$  (a) bzw.  $10 \pm 2^\circ$  (b) diffuse konzentrische Ringe beobachtet.

Die Aufweitung des primär gebeugten Laserpunktes von 2 mm auf 8 mm scheint von Streuobjekten verursacht zu werden, deren Ausdehnung deutlich kleiner als die der Laserwellenlänge sind. Durch Korrelation mit AFM-Bildern kann die sechszählige Symmetrie den hexagonalen Pyramidenflächen zugeordnet werden. Die Höhenvariation der Pyramiden verändert die Winkel der Pyramidenflächen zur DBR-Oberfläche ( $0^\circ$  bis  $2^\circ$ ), so daß im Beugungsbild Linien mit sechszähliger Symmetrie entstehen. Die aus der Länge der sechszähligen Linien abgeschätzte rms-Rauigkeit

**Tabelle 7.2:** Korrigierte optische Reflektivitäten der Bragg-Reflektoren. Die Abschätzungen basieren auf der semi-quantitativen Analyse der Streuverluste, die durch Laserstreuung an den DBR-Oberflächen entstehen.

	M2417	M2418	M2420	M2422	M2423
$P$	35	50	19	35	35
$E(R_{max})$ (nm)	480	536	400	440	418
$R_{max}^{exp}$	0.78	0.66	0.64	0.65	0.935
$\Delta R^{Halo}$ (%)	–	12	–	13	–
$\Delta R^{Pyram.}$ (%)	3	3	3	3	3
$R_{max}$	<b>0.80</b>	<b>0.76</b>	<b>0.66</b>	<b>0.75</b>	<b>0.96</b>
$R_{theo}$	0.92	0.92	0.78	0.91	0.97
$R_{max}/R_{theo}$ (%)	87	83	85	83	99

der Probenoberfläche zeigt eine gute Übereinstimmung mit der AFM-Statistik.<sup>4</sup> Die Pyramidenbildung folgt selbst über makroskopische Entfernungen strikt einer Vorzugsorientierung.

Dem Winkelbereich der konzentrischen Ringe (Halo) können statistisch verteilte Facettenflächen zugeordnet werden. Dieser Halo wird nur bei Bragg-Spiegeln beobachtet, die in AFM-Bildern eine ausgeprägte Plateau-Morphologie aufweisen. Der Winkelbereich des Halos beschreibt demnach die Winkel der Facetten, die die Plateaus voneinander abgrenzen. Diese Oberflächenbereiche sind durch Kreise in den eingefügten AFM-Bildern der Abb. 7.4(a) und (b) gekennzeichnet. Durch das Fehlen einer bevorzugten Facettenorientierung bildet sich ein konzentrischer Ring.

Wird dagegen He-Ne-Laserstrahlung (628 nm) an den Reflektor-Oberflächen gestreut, fehlt in den Beugungsbildern die sechszählige Symmetrie und der Halo fast vollständig. Daraus kann geschlossen werden, daß die Laserwellenlänge größer als die Streuobjekte ist. Tatsächlich beträgt die typische Ausdehnung der Pyramidenflächen und Plateaufacetten ca. 400–500 nm.

Die normal zur Probenebene durchgeführten Reflektivitätsmessungen berücksichtigen die DBR-Reflexion in einem Winkelbereich von 0° bis 1.5°, bei epitaktischen Spiegeln mit Plateau-Morphologie wird deshalb *nicht* die integrierte Intensität des Halos von ca. 10–13% erfaßt. Ausgeprägte Pyramiden reduzieren die Reflektivität um ca. 3%.

Die Abschätzung der Reflektivitätsverluste in Tabelle 7.2 berücksichtigt lediglich die Streuung an oberflächennahen Grenzflächen, da die Laserstrahlung in den GaN-Schichten exponentiell absorbiert wird. Zusätzlich reduzieren folgende Effekte die Reflektivität: (i) Die Korrugation der oberflächenfernen Grenzflächen tragen auch zum Reflektivitätsverlust bei. (ii) Die durch das Relaxieren der (Al,Ga)N-Schichten bedingte hohe Versetzungsdichte verursacht eine Streuung an kristallinen Defekten, da deren umgebendes Spannungsfeld eine Variation des Brechungsindex erzeugt [181]. (iii) Desweiteren sollte bei Stoppbandenergien von  $E > 3.0$  eV ( $\lambda < 413$  nm) die parasitäre Substratabsorption die Reflektivität reduzieren.

<sup>4</sup>Zum Beispiel entspricht die sechszählige Symmetrie von  $\pm 2^\circ$  in Abb. 7.4(b) Pyramidenwinkeln von 0° bis 2°. Bei einer mittleren Basislänge von 1  $\mu\text{m}$  resultiert daraus eine mittlere bzw. rms-Rauhigkeit von 180 Å. Die aus AFM-Messungen (genauer) bestimmte rms-Rauhigkeit der Probe beträgt 223 Å.

**Zusammenfassung** Die Reflektivitätsverluste der synthetisierten GaN/(Al,Ga)N-DBRs, die durch  $\mu\text{m}$ -große Grenzflächenrauigkeiten (sechszählige Pyramiden, Facetten etc.) entstehen, können durch  $\text{NH}_3$ -reiche Synthesebedingungen minimiert werden. Unter der Maßgabe von elektrisch leitfähigen Bragg-Spiegeln, wie sie in GaN-basierenden VCSELs Anwendung finden, sind die hier realisierten Reflektivitäten von bis zu 93% bei 418 nm durchaus vergleichbar mit den besten Ergebnissen in Ref. [168, 171, 174, 88]. Die reaktive MBE ist somit eine attraktive Alternative zu der MOCVD und PAMBE von Bragg-Reflektoren.



## Rückblick und Ausblick

**Zusammenfassung** Die vorliegende Arbeit behandelt die Herstellung und Charakterisierung von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen. Für die Synthese dieser Strukturen wurde die reaktive Molekularstrahlepitaxie genutzt. Dieses Abscheideverfahren ist eine noch wenig etablierte Methode, um GaN-basierende Heterostrukturen sowohl mit hoher struktureller Qualität, als auch guten optischen und elektrischen Eigenschaften herzustellen. Ein Großteil der Arbeit wurde deshalb auf die Optimierung der Herstellung reiner GaN-Pufferschichten verwendet. In den Kapiteln 2–4 wird ausführlich die reaktive MBE, die Substratpräparation, die Synthese und die Eigenschaften von GaN-Schichten erläutert.

Kapitel 5 widmet sich der Herstellung und den Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Multiquantenwells. Hierzu werden im ersten Teil die Auswirkungen der spontanen und Piezopolarisation auf die optischen Eigenschaften von GaN-MQWs studiert. Es konnte erstmalig theoretisch *und* experimentell bewiesen werden, daß die elektrostatischen Felder in diesen Heterostrukturen selbst bei höchsten Ladungsträgerkonzentrationen *nicht* abgeschirmt werden können. So hat die Präsenz dieser Felder in optischen Bauelementen, wie z. B. Lasern und LEDs, große Auswirkungen auf die Effizienz ihrer Elektrolumineszenz. Im zweiten Teil wurde ein PL-Verbreiterungsmechanismus beschrieben, der in GaN-QWs durch die Kombination der besonderen Grenzflächenmorphologie und der unterschiedlichen Wachstumsmodi von GaN und (Al,Ga)N entsteht.

In den Kapiteln 6 und 7 wurden potentielle Anwendungen von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen aufgegriffen, die mit der reaktiven MBE in hoher Gesamtqualität hergestellt werden konnten. Kapitel 6 beschreibt die optimierte Synthese und die Charakterisierung von (Al,Ga)N/GaN-Heterostruktur-Feldeffekttransistoren auf semi-isolierenden (Al,Ga)N-Puffern, die 2DEG-Beweglichkeiten von bis zu  $750 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  bei Raumtemperatur zeigen. Zur Analyse der limitierenden Streumechanismen in diesen Strukturen wurden die temperaturabhängigen HFET-Beweglichkeiten simuliert. So konnte in Übereinstimmung mit SIMS-Messungen belegt werden, daß die Transistoreigenschaften dominant durch tiefe Störstellen – sehr wahrscheinlich As – begrenzt werden. Diese Erkenntnis eröffnet die gezielte Optimierung der HFET-Herstellung sowie eine Verbesserung der Reinheit des MBE-Systems. Aus den HFET-Strukturen wurden Transistoren mit guten Schalteigenschaften prozessiert.

In Kapitel 7 werden die Herstellung und die Eigenschaften von GaN/(Al,Ga)N-Bragg-Reflektoren dargelegt. Die Analyse und Simulation dieser spannungskompensierten Heterostrukturen gestattete bei 400 nm Reflektivitäten von über 93%.

**Fazit** Es konnte gezeigt werden, daß die reaktive Molekularstrahlepitaxie ein attraktives Verfahren zur Herstellung von GaN-basierenden Multischichtstrukturen mit hoher struktureller, elektrischer und optischer Qualität ist. Diese Entwicklung basiert auf der sorgfältigen Verbesserung aller Herstellungsbedingungen, insbesondere der Realisierung von hohen Wachstumsraten und atomar glatten Grenzflächen.

Die auf der Basis von qualitativ hochwertigen GaN-Pufferschichten synthetisierten Bragg-Reflektoren eignen sich aufgrund ihrer elektrischen Leitfähigkeit und der guten Wärmeleitfähigkeit über das SiC-Substrat für die untere Verspiegelung von

*micro cavity*-LEDs und oberflächenemittierenden Laserstrukturen (VCSEL). Desweiteren sind die – obwohl heteroepitaktisch – hergestellten Spiegel durch die Spannungskompensation zum (Al,Ga)N-Puffer frei von Rissen. Diese Eigenschaften machen RMBE-Bragg-Reflektoren zu potentiellen Komponenten von VCSEL-Anwendungen. Hierfür müßten die Reflektivitäten noch weiter optimiert werden.

Auf dem Gebiet der elektronischen Anwendungen wurden die Simulationen der 2DEG-Beweglichkeiten erstmals derart gedeutet, daß die tiefe, neutrale As-Störstelle für die beobachteten moderaten Beweglichkeiten in den GaN-basierenden HFETs verantwortlich ist. Diese Verunreinigung findet sich in allen MBE-Systemen, die vorher zur GaAs-Epitaxie genutzt wurden. Damit muß geschlußfolgert werden, daß eine signifikante Verbesserung der 2DEG-Beweglichkeiten und damit der Transistoreigenschaften nur in As-freien MBE-Systemen möglich ist. Diese Interpretation deckt sich mit ähnlichen experimentellen Ergebnissen aus der Literatur.

Die Herstellung solcher Bauelemente und Komponenten wurde erst durch eine stetige Verbesserung der Substratpräparation und der Epitaxie ermöglicht. Dabei wurde darauf geachtet, daß das Prozeßfenster während der Synthese probenunabhängig durch *in situ*-RHEED kontrolliert werden kann. Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit belegen klar, daß die reaktive MBE eine attraktive Alternative zu den etablierten Herstellungstechniken der plasma-unterstützten MBE und der MOCVD ist. Mehr noch, die RMBE bietet durch die einfache Injektortechnik lange Standzeiten und zeitstabile Epitaxiebedingungen, die dieses kostengünstige Verfahren (hinsichtlich Sicherheitsanforderungen, Precursor-Verbrauch und -Entsorgung) nicht nur für die Nitrid-Forschung, sondern auch für die industrielle Bauelement-Fertigung interessant macht.

**Ausblick** Obwohl die vorliegende Arbeit Teilerfolge auf dem Weg zur Bauelementherstellung aufzeigt, wurden die Probeneigenschaften stark durch die 'technologischen Gegebenheiten' des 20 Jahre alten MBE-Systems beschränkt. Hier liegt die Zukunft der RMBE: Ein As-freies Drei-Kammer-System sollte – bei gleichen Prozeßbedingungen – eine sprunghafte Verbesserung der elektrischen und optischen Eigenschaften bewirken. Zudem könnte ein Glykol-gekühlter Shroud und ein speziell auf die Erfordernisse der RMBE abgestimmtes Design der UHV-Kammern ein schnelleres und separates Abpumpen des  $\text{NH}_3$ -Prozeßgases aus einem  $\text{LN}_2$ -gekühltem *baffle* bieten.

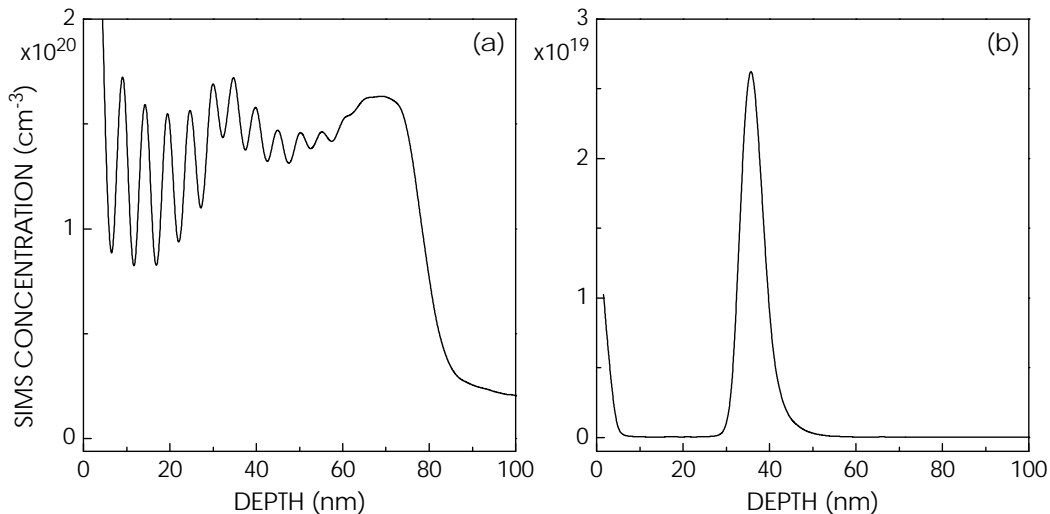
Da gerade die RMBE GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen mit exzellenter Qualität liefert, ist neben der industrienahen HFET-Optimierung auch ein Studium möglicher optischer Anwendungen denkbar: Zum einen wurden in der vorliegenden Arbeit keinerlei Experimente zur p-Dotierung durchgeführt, die in GaN/(Al,Ga)N-LEDs Anwendung finden könnte. Zum anderen sind die Gruppe-III-Nitride ein vielversprechendes Materialsystem für Quanten-Kaskaden-Laser (QCL), die infolge des hohen Leitungsband-Offsets von bis zu 2 eV bei den Kommunikations-Wellenlängen 1.3  $\mu\text{m}$  und 1.55  $\mu\text{m}$  betrieben werden könnten. Hierzu wurde kürzlich an (16 Å) GaN/ $\text{Al}_{0.85}\text{Ga}_{0.15}\text{N}$ -MQWs eine ausgeprägte Interband-Absorption bei 1.52  $\mu\text{m}$  beobachtet [182].

## A Anhang

### Synthese von (In,Ga)N/GaN-Heterostrukturen

Das Materialsystem  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  hat eine direkte Bandlücke, die je nach Wahl des In-Gehaltes  $x$  von 1.9 eV bis 3.4 eV rangiert. Diese Legierung wird in der aktiven Region von Lichtemittern genutzt, um eine Emission im sichtbaren Spektralbereich zu ermöglichen. Während Laserdioden und kommerzielle Leuchtdioden erfolgreich mittels MOCVD produziert werden [7], befindet sich die MBE-Synthese noch im Entwicklungsprozeß. Die Epitaxie von (In,Ga)N ist allgemein problematisch, da In einen hohen Dampfdruck und eine Löslichkeitsgrenze von 6% [183] hat. Dieses macht ein Absenken der Wachstumstemperatur auf 500–620°C und ein hohes In/Ga- sowie V/III-Verhältnis erforderlich [49, 184, 74].

Diese Wachstumsparameter erweisen sich im speziellen bei der reaktiven MBE als kritisch, da die  $\text{NH}_3$ -Dissoziation in diesem Regime dramatisch zurückgeht [53]. Bisher konnten Kamp *et al.*, Yoshida *et al.* und Grandjean *et al.* (In,Ga)N-Strukturen von maximal  $x = 0.04$ ,  $x = 0.2$  bzw.  $x = 0.25$  herstellen, wobei die Depositionsbedingungen stark variierten [49, 185, 74]. Im Gegensatz dazu wurden mittels plasma-aktivierter MBE In-Gehalte über den gesamten Kompositionsbereich problemlos realisiert [186]. (In,Ga)N-QWs wurden bei Wachstumsraten von 100 nm/h auf GaN-Puffern bei Temperaturen von 635°C und 610°C abgeschieden, wobei das V/III-Verhältnis 20–35 und das In/Ga-Verhältnis 10–20 betrug. Abbildung 1 zeigt die SIMS-Profile von zwei repräsentativen Beispielen, bei denen In-Konzentrationen von  $1.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  und  $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  realisiert wurden, was Volumenkonzentrationen von 2% und 0.4% entspricht. Trotz der extremen Synthesebedingungen konnten keine höheren In-Gehalte erzielt werden.



**Abbildung 1:** SIMS-Tiefenprofile der In-Konzentration. (a) 15-periodischer  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ -MQW, dessen nominelle Well- und Barrieren-Dicken 2 nm bzw. 4 nm betragen. Die In-Volumenkonzentration beträgt  $x = 0.02$ . (b) Nominell 2.5 nm dicker  $\text{In}_{0.004}\text{Ga}_{0.996}\text{N}$ -SQW mit 35 nm Deckschicht. Der oberflächennahe Konzentrationsanstieg und die Abnahme der Oszillationsamplitude in (a) sind meßbedingte Artefakte.

Entgegen den Beobachtungen von Grandjean *et al.* wurde im RHEED kein 2D→3D-Übergang, sondern eine Glättung der Wachstumsfront bei Beginn der (In,Ga)N-Deposition beobachtet. Die PL-Messungen an diesen QWs ergaben keine Anzeichen auf (In,Ga)N-Lumineszenz. Obwohl die in Abb. 1(a) gezeigte In-Konzentration der MQW-Struktur periodisch moduliert ist, konnte in den Röntgenbeugungsprofilen keine Übergitter-Reflexe detektiert werden.

Die Gründe für die Unfähigkeit der RMBE zur (In,Ga)N-Synthese sind nicht vollständig verstanden. Zum einen erschweren die Kopplung der NH<sub>3</sub>-Aktivierung an die Wachstumstemperatur, die extremen Flußverhältnisse und das kleine Prozeßfenster den (In,Ga)N-Herstellungsprozeß. Zum anderen müssen aber andere Einflüsse eine bedeutende Rolle spielen. Denkbar wäre z. B. eine Passivierung der freien Oberflächenbindungen durch reaktiven H, der den In-Einbau reduziert. Ferner verhält sich In als großes Atom wie eine weiche Lewissäure, da die äußeren Elektronenschalen weniger stark gebunden und somit leicht polarisierbar sind. Die zur NH<sub>3</sub>-Katalyse [und folglich (In,Ga)N-Wachstum] notwendige Komplexbildung aus harter Lewisbase NH<sub>3</sub> und weicher Lewissäure In ist chemisch nicht favorisiert. Stattdessen reagiert NH<sub>3</sub> mit der konkurrierenden, harten Lewissäure Ga, und In kann verstärkt desorbieren.

Die ungünstige Oberflächenchemie zwischen NH<sub>3</sub> und In würde somit die geringen In-Gehalte erklären. Demnach könnten höhere In-Konzentrationen nur durch radikal höhere V/III-Verhältnisse – ähnlich denen der MOCVD – erzielt werden. Der damit verbundene NH<sub>3</sub>-Gasballast konnte jedoch durch die genutzte Turbomolekularpumpe (1.300 l/s) nicht bewältigt werden, so daß auf weitere Experimente in dieser Richtung verzichtet wurde.

# Literaturverzeichnis

- [1] S. Strite and H. Morkoç, J. Vac. Sci. Technol. B **10**, 1237 (1992), und darin enthaltende Referenzen.
- [2] S. J. Pearton, J. C. Zolper, R. J. Shul, and F. Ren, J. Appl. Phys. **86**, 1 (1999).
- [3] I. Akasaki, J. Cryst. Growth **189/190**, 885 (1999).
- [4] S. Porowski, J. Cryst. Growth **189/190**, 153 (1998).
- [5] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, and R. V. Overstraeten, J. Appl. Phys. **87**, 965 (2000).
- [6] P. Waltereit, O. Brandt, A. Trampert, H. T. Grahn, J. Menniger, M. Ramsteiner, M. Reiche, and K. H. Ploog, Nature **400**, 1 (2000).
- [7] S. Nakamura and F. Fasol, *The Blue Laser Diode* (Springer, Berlin, 1997).
- [8] A. Kuramata, K. Horino, and K. Domen, Fujitsu Sci. Tech. J. **34**, 191 (1998).
- [9] T. Someya, R. Werner, A. Forchel, M. Catalano, R. Cingolani, and Y. Arakawa, Science **285**, 1905 (1999).
- [10] M. S. Shur and M. A. Khan, MRS Bull. **22**, 44 (1997).
- [11] G. R. Kline and K. M. Lakin, Appl. Phys. Lett. **43**, 750 (1983).
- [12] Y.-F. Wu, B. P. Keller, P. Fim, J. Pustl, M. Le, N. X. Nguyen, C. Nguyen, D. Widman, S. Keller, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, Electron. Lett. **33**, 1743 (1997).
- [13] S. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L1705 (1991).
- [14] M. A. Herman and H. Sitter, *Molecular Beam Epitaxy*, 2nd ed. (Springer, Berlin, 1996).
- [15] C. R. Abernathy, in *GaN and Related Materials*, edited by S. J. Pearton (Gordon and Breach, New York, 1997), pp. 11-51.
- [16] B. Heying, X. H. Wu, S. Keller, Y. Li, D. Kopolnek, B. P. Keller, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, Appl. Phys. Lett. **68**, 643 (1996).
- [17] F. Boscherini, R. Lantier, A. Rizzi, F. D'Acapito, and S. Mobilio, Appl. Phys. Lett. **74**, 3308 (1999).
- [18] O. Brandt, R. Muraliharan, P. Waltereit, A. Thamm, A. Trampert, H. von Kiedrowski, and K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **75**, 4019 (1999).
- [19] H. Morkoç, S. Strite, G. B. Gao, M. E. Lin, B. Sverdlov, and M. Burns, J. Appl. Phys. **76**, 1363 (1994).
- [20] *Compound Semiconductor*, Vol. 5, No. 5, Franklin Publishing, 1999.

- [21] *Compound Semiconductor*, Vol. 5, No. 7, Franklin Publishing, 1999.
- [22] *Compound Semiconductor*, Vol. 6, No. 1, Franklin Publishing, 2000.
- [23] L. Sloat and A. W. C. Menzies, *J. Phys. Chem.* **35**, 2005 (1931).
- [24] W. C. Johnson, J. B. Parsons, and M. C. Crew, *J. Phys. Chem.* **36**, 2561 (1932).
- [25] H. P. Maruska and J. J. Tietjen, *Appl. Phys. Lett.* **15**, 327 (1969).
- [26] H. Gotoh, T. Suga, H. Suzuki, and M. Kimata, *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, L545 (1981).
- [27] S. Yoshida, S. Misawa, and S. Gonda, *Appl. Phys. Lett.* **42**, 427 (1983).
- [28] M. T. Wauk and D. K. Winslow, *Appl. Phys. Lett.* **13**, 286 (1968).
- [29] *Epitaxie Endotaxie*, edited by H. G. Schneider (Deutscher Verlag für Grundstoff-industrie, Leipzig, 1969).
- [30] E. Bauer, *Z. Kristallogr.* **10**, 372 (1958).
- [31] P. G. Gennes, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 827 (1985).
- [32] N. Grandjean, J. Massies, M. Leroux, and P. Lorenzini, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 907 (1998).
- [33] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1687 (1994).
- [34] H. Tang and J. B. Webb, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2373 (1999).
- [35] H. Tang, J. B. Webb, J. A. Bardwell, and T. MacElwee, *J. Vac. Sci. Technol. B* **18**, 652 (2000).
- [36] C. Kirchner, V. Schwengler, F. Eberhard, M. Kamp, K. J. Ebeling, K. Kornitzer, T. Ebner, K. Thonke, R. Sauer, P. Prystawko, M. Leszczynski, I. Grzegory, and S. Porowski, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1098 (1999).
- [37] R. Singh, R. J. Barrett, J. J. Gomes, F. P. Dabkowski, and T. D. Moustakas, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **3**, 13 (1998).
- [38] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, and T. Mukai, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **4S1**, G1.1 (1999).
- [39] S. F. Fang, K. Adomi, S. Iyer, and H. Morkoç, *J. Appl. Phys.* **68**, R31 (1990).
- [40] J. Soutade, C. Fontaine, and A. Munoz-Yagüe, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1764 (1991).
- [41] L. Tapfer, J. R. Martinez, and K. Ploog, *Semicond. Sci. Technol.* **4**, 617 (1989).
- [42] K. Adomi, S. Strite, and H. Morkoç, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 469 (1990).
- [43] W. Stolz, Y. Horikoshi, M. Naganuma, and K. Nozawa, *J. Cryst. Growth* **95**, 87 (1989).



- [44] T. C. Fu, N. Newman, E. Jones, J. S. Chan, X. Liu, M. D. Rubin, N. W. Cheung, and E. R. Weber, *J. Electron. Mat.* **24**, 249 (1995).
- [45] A. J. Ptak, K. S. Ziemer, L. J. Holbert, C. D. Stinespring, and T. H. Myers, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **4**, 33 (1999).
- [46] M. Mayer, A. Pelzmann, M. Kamp, K. J. Ebeling, H. Teisseyre, G. Nowak, M. Leszczynski, I. Grezegory, S. Porowski, and G. Karczewski, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 1634 (1997).
- [47] J. M. Zavada, R. G. Wilson, C. R. Abernathy, and S. J. Pearton, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 2724 (1994).
- [48] J. Neugebauer and C. V. de Walle, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4452 (1995).
- [49] M. Kamp, M. Mayer, A. Pelzmann, and K. E. Ebeling, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **2**, 26 (1997).
- [50] N. Grandjean, J. Massies, P. Venegues, M. Leroux, F. Demangeot, M. Renucci, and J. Frandon, *J. Appl. Phys.* **83**, 1379 (1997).
- [51] D. E. Crawford, R. Held, A. M. Johnson, A. M. Dabiran, and P. I. Cohen, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **1**, 12 (1996).
- [52] S. S. Liu and D. A. Stevenson, *J. Electrochem. Soc.* **125**, 1161 (1978).
- [53] M. Mesrine, N. Grandjean, and J. Massies, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 350 (1998).
- [54] N. Grandjean, J. Massies, F. Semond, S. Y. Karpov, and R. A. Talalaev, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1854 (1999).
- [55] O. Ambacher, M. S. Brandt, R. Dimitrov, T. Metzger, M. Stutzmann, R. A. Fischer, A. Miehr, A. Bergmaier, and G. Dollinger, *J. Vac. Sci. Technol. B* **14**, 3532 (1996).
- [56] A. N. Alexeev, B. A. Borisov, V. P. Chaly, D. M. Demidov, A. L. Dudin, D. M. Krasovitsky, Y. V. Pogorelski, A. P. Shkurko, I. A. Sokolov, M. V. Stepanov, and A. L. Ter-Martirosyan, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **4**, 6 (1999).
- [57] P. Hacke, G. Feuillet, H. Okumura, and S. Yoshida, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2507 (1996).
- [58] K. R. Evans, T. Lei, and C. R. Jones, *Solid State Electronics* **41**, 339 (1997).
- [59] T. K. Zywietz, J. Neugebauer, and M. Scheffler, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 487 (1998).
- [60] E. Kim, I. Berishev, A. Bensaoula, I. Rusakova, K. Waters, and J. A. Schultz, *J. Appl. Phys.* **85**, 1178 (1999).
- [61] U. Starke, *Phys. Stat. Sol.* **202**, 475 (1997).
- [62] U. Starke, C. Bram, P.-R. Steiner, W. Hartner, L. Hammer, K. Heinz, and K. Muller, *Appl. Surf. Sci.* **89**, 175 (1995).

- [63] T. L. Chu and R. B. Campbell, *J. Electrochem. Soc.* **112**, 955 (1965).
- [64] F. Owman, Ph.D. thesis, Linköping University, Schweden, 1997.
- [65] V. Ramachandran, M. F. Brady, A. R. Smith, R. M. Feenstra, and D. W. Grewe, *J. Electron. Mat.* **27**, 308 (1998).
- [66] R. Kaplan, *Surf. Sci.* **215**, 111 (1989).
- [67] S. Strite, M. E. Lin, and H. Morkoç, *Thin Solid Film* **231**, 197 (1993).
- [68] F. Owman and P. Martensson, *J. Vac. Sci. Technol. B* **14**, 933 (1995).
- [69] V. Ramachandran and R. M. Feenstra, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1000 (1999).
- [70] W. I. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 1149 (1984).
- [71] P. Waltereit, O. Brandt, A. Trampert, M. Ramsteiner, M. Reiche, M. Qi, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3660 (1999).
- [72] E. J. Tarsa, B. Heying, X. H. Wu, P. Fini, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **82**, 5473 (1997).
- [73] D. J. Eaglesham, *J. Appl. Phys.* **77**, 3597 (1994).
- [74] N. Grandjean and J. Massies, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1078 (1998).
- [75] G. Feuillet, H. Hamaguchi, K. Ohta, P. Hacke, H. Okumura, and S. Yoshida, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1025 (1997).
- [76] N. Newman, J. Ross, and A. W. Searcy, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1242 (1993).
- [77] S. Guha, N. A. Bojarczuk, and D. W. Kisker, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2879 (1996).
- [78] L. K. Li, J. Alperin, W. I. Wang, D. C. Look, and D. C. Reynolds, *J. Vac. Sci. Technol. B* **16**, 1275 (1998).
- [79] R. J. Molnar and T. D. Moustakas, *J. Appl. Phys.* **76**, 4587 (1994).
- [80] N. Grandjean, M. Leroux, J. Massies, M. Mesrine, and M. Laügt, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, 618 (1999).
- [81] X.-Q. Shen, P. Ramvall, P. Riblet, and Y. Aoyagi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, 411 (1999).
- [82] W. Kim, O. Aktas, A. E. Botchkarev, S. N. Mohammed, and H. Morkoç, *J. Appl. Phys.* **79**, 7657 (1996).
- [83] S. Vezian, J. Massies, F. Semond, N. Grandjean, and P. Venegues, *Phys. Rev. B* **61**, 7618 (2000).
- [84] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* **56**, R10024 (1997).
- [85] F. Bernardini and V. Fiorentini, *Phys. Rev. B* **57**, R9427 (1998).

- [86] F. D. Sala, A. D. Carlo, F. Bernardini, V. Fiorentini, R. Scholz, and J.-M. Jancu, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2002 (1999).
- [87] V. Fiorentini, F. Bernardini, F. D. Sala, A. D. Carlo, and P. Lugli, *Phys. Rev. B* **60**, 8849 (1999).
- [88] R. Langer, J. Simon, V. Ortiz, N. T. Pelekanos, A. Barski, R. André, and M. Godlewski, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3837 (1999).
- [89] A. Hangleiter, J. S. Im, H. Kollmer, J. Off, and F. Scholz, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **3**, 15 (1998).
- [90] E. S. Hellman, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **3**, 11 (1998).
- [91] T. Sasaki and T. Matsuoka, *J. Appl. Phys.* **64**, 4531 (1988).
- [92] M. A. Khan, J. N. Kuznia, T. D. Olson, and R. Kaplan, *J. Appl. Phys.* **73**, 3108 (1993).
- [93] F. A. Ponce, C. G. V. de Walle, and J. E. Northrup, *Phys. Rev. B* **53**, 7473 (1996).
- [94] B. Daudin, J. L. Rouviere, and M. Arlery, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2480 (1996).
- [95] J. L. Weyher, S. Müller, I. Grzegory, and S. Porowski, *J. Cryst. Growth* **182**, 17 (1997).
- [96] A. R. Smith, R. M. Feenstra, J. N. D. W. Greve, and J. E. Northrup, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3934 (1997).
- [97] K. Rapcewicz, M. B. Nardelli, and J. Bernholc, *Phys. Rev. B* **56**, 12725 (1997).
- [98] T. Matsushita, S. Kikuta, and K. Kohra, *J. Phys. Soc. Japan* **30**, 1136 (1971).
- [99] V. Srikant, J. S. Speck, and D. R. Clarke, *J. Appl. Phys.* **82**, 4286 (1997).
- [100] O. Brandt, P. Waltereit, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. B*, eingereicht .
- [101] T. Metzger, R. Höpler, E. Born, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Stömmer, M. Schuster, H. Göbel, S. Christiansen, M. Albrecht, and H. P. Strunk, *Philosophical Magazine A* **77**, 1013 (1998).
- [102] R. N. Kyutt, V. V. Ratnikov, G. N. Mosina, and M. P. Shcheglov, *Physics of the Solid State* **41**, 25 (1999).
- [103] H. Heinke, V. Kirchner, S. Einfeldt, and D. Hommel, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2145 (2000).
- [104] B. Heying, E. J. Tarsa, C. R. Elsass, P. Fini, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *J. Appl. Phys.* **85**, 6470 (1999).
- [105] V. I. Litvinov and M. Razeghi, *Phys. Rev. B* **59**, 9783 (1999).

- [106] B. Monemar, in *Semiconductors and Semimetals*, edited by J. T. Pankove and T. D. Moustakas (Academic Press, San Diego, 1998), Vol. 50, Chap. Gallium Nitride (GaN) I.
- [107] S. Perkowitz, *Optical Characterization of Semiconductors* (Academic Press, London, 1993).
- [108] P. T. Landsberg, *Recombination in Semiconductors* (Cambridge University Press, Cambridge, 1991).
- [109] *Semiconductors and Semimetals*, edited by R. K. Willardson and A. C. Beer (Academic Press, New York, 1972), Vol. 8.
- [110] B. Schäfer, in *Lehrbuch der Experimentalphysik*, edited by H. Gobrecht (de Gruyter, Berlin, 1987), Vol. 3.
- [111] J. A. V. Vechten and T. K. Bergstresser, Phys. Rev. B **1**, 3351 (1970).
- [112] E. Iliopoulos, D. Doppalapudi, H. M. Ng, and T. D. Moustakas, Appl. Phys. Lett. **73**, 375 (1998).
- [113] D. M. Hoffman, D. Kovalev, G. Steude, B. K. Meyer, A. Hoffman, L. Eckey, R. Heitz, T. Detchprom, A. Amano, and I. Akasaki, Phys. Rev. B **52**, 16702 (1997).
- [114] H. M. Chen, Y. F. Chen, M. C. Lee, and M. S. Feng, Phys. Rev. B **56**, 6942 (1997).
- [115] E. Calleja, F. J. Sanchez, D. Basak, M. A. Sanchez-Garcia, E. Munoz, I. Izpura, F. Calle, J. M. G. Tijero, L. J. Sanchez-Rojas, B. Beaumont, P. Lorenzini, and P. Gibart, Phys. Rev. B **55**, 4689 (1997).
- [116] F. A. Ponce, D. P. Bour, W. Götz, and P. J. Wright, Appl. Phys. Lett. **68**, 57 (1996).
- [117] J. P. Hirth and J. Lothe, *Theory of Dislocations*, 2 ed. (Krieger Publishing Company, Florida, 1992).
- [118] G. Li, S. J. Chua, S. J. Xu, W. Wang, P. Li, B. Beaumont, and P. Gibart, Appl. Phys. Lett. **74**, 2821 (1999).
- [119] P. J. Hansen, Y. E. Strausser, A. N. Erickson, E. J. Tarsa, P. Kozodoy, E. G. Brazel, J. P. Ibbetson, U. Mishra, V. Narayanamurti, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, Appl. Phys. Lett. **72**, 2247 (1998).
- [120] C. G. V. der Walle and J. Neugebauer, Appl. Phys. Lett. **76**, 1009 (2000).
- [121] D. C. Look and R. J. Molnar, Appl. Phys. Lett. **70**, 3377 (1997).
- [122] P. Blood and J. W. Orton, *The electrical characterization of semiconductors: majority carriers and electrical states* (Academic Press, London, 1992).
- [123] B. Schäfer, in *Lehrbuch der Experimentalphysik*, edited by W. Raith (de Gruyter, Berlin, 1992), Vol. 6.

- [124] A. Rizzi, R. Lantier, F. Monti, H. Lüth, F. DellaSala, A. DiCarlo, and P. Lugli, J. Vac. Sci. Technol. B **17**, 1674 (1999).
- [125] R. Resta, Review of Modern Physics **66**, 899 (1994).
- [126] A. F. Wright, J. Appl. Phys. **82**, 2839 (1997).
- [127] O. Brandt, in *Group III Nitride Semiconductors Compounds: Physics and Applications*, edited by B. Gil (Oxford University Press, Oxford, 1998), Chap. Cubic Nitrides, pp. 417–459.
- [128] S.-H. Park and S.-L. Chuang, Appl. Phys. Lett. **72**, 3103 (1998).
- [129] S.-H. Park and S.-L. Chuang, Appl. Phys. Lett. **75**, 1354 (1999).
- [130] W. Kim, A. E. Botchkarev, A. Salvador, G. Popovici, H. Tang, and H. Morkoç, J. Appl. Phys. **82**, 219 (1997).
- [131] R. P. Leavitt and J. W. Little, Phys. Rev. B **42**, 11774 (1990).
- [132] F. Binet, J. Y. Duboz, J. Off, and F. Scholz, Phys. Rev. B **60**, 4715 (1999).
- [133] T. Deguchi, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, L914 (1999).
- [134] U. Jahn, S. K. Kwok, M. Ramsteiner, R. Hey, E. Runge, and H. T. Grahn, Phys. Rev. B **54**, 2733 (1996).
- [135] J. Singh, K. K. Bajaj, and S. Chaudhuri, Appl. Phys. Lett. **44**, 805 (1984).
- [136] J. Singh and K. K. Bajaj, J. Appl. Phys. **57**, 5433 (1985).
- [137] S. N. Mohammed, W. Kim, A. Salvador, and H. Morkoç, MRS Bulletin **2**, 22 (1997).
- [138] N. S. Mansour, K. W. Kim, and M. A. Littlejohn, J. Appl. Phys. **77**, 283 (1995).
- [139] O. Ambacher, J. Smart, J. R. Shearly, N. G. Weimann, K. Chu, M. Murphy, W. J. Schaff, L. F. Eastman, R. Dimitrov, L. Wittmer, M. Stutzmann, W. Rieger, and J. Hilsenbeck, J. Appl. Phys. **85**, 3222 (1999).
- [140] L. Hsu and W. Walukiewicz, Appl. Phys. Lett. **73**, 339 (1998).
- [141] J. P. Ibbetson, P. T. Fini, K. D. Ness, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and U. K. Mishra, Appl. Phys. Lett. **77**, 250 (2000).
- [142] A. Zur, T. C. McGill, and D. L. Smith, Phys. Rev. B **28**, 2060 (1983).
- [143] L. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Stormer, and K. W. Baldwin, Appl. Phys. Lett. **55**, 1888 (1989).
- [144] S. F. Fang, K. Adomi, S. Iyer, H. Morkoç, H. Zabel, C. Choi, and N. Otsuka, J. Appl. Phys. **68**, 31 (1990).

- [145] I. P. Smorchkova, C. R. Elsass, J. P. Ibbetson, R. Ventury, B. Heying, P. Fini, E. Haus, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and U. K. Mishra, *J. Appl. Phys.* **86**, 4520 (1999).
- [146] W. Walukiewicz and E. E. Haller, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 1638 (1991).
- [147] M. Shur, B. Gelmont, and M. A. Khan, *Journal of Electronic Materials* **25**, 777 (1995).
- [148] D. C. Look and J. R. Sizelove, *Phys. Rev. B* **82**, 1237 (1999).
- [149] S. Dhar and S. Gosh, *J. Appl. Phys.* **86**, 2668 (1999).
- [150] W. Götz, J. Walker, L. T. Romano, N. M. Johnson, and R. J. Molnar, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **449**, 525 (1997).
- [151] M. D. McCluskey, N. M. Johnson, C. G. V. de Walle, D. P. Bour, M. Kneissl, and W. Walukiewicz, *Phys. Rev. B* **80**, 4008 (1997).
- [152] O. Ambacher, M. Arzberger, D. Brunner, H. Angerer, and F. Freudenberger, *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **2**, 22 (1997).
- [153] T. Wang, Y. Ohno, M. Lachab, D. Nakagawa, T. Shirahama, S. Sakai, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3531 (1999).
- [154] G. L. Snider, *1D Poisson/Schrödinger: a band diagram calculator (computer program)* (University of Notre Dame, Notre Dame, 1995).
- [155] D. C. Look, *Electrical characterization of GaAs materials and devices* (John Wiley & Sons, Chicester, 1989).
- [156] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures* (Halsted Press, John Wiley, New York, 1988).
- [157] N. G. Weimann, L. F. Eastman, D. Doppalapudi, H. M. Ng, and T. D. Moustakas, *J. Appl. Phys.* **83**, 3656 (1998).
- [158] H. M. Ng, D. Doppalapudi, T. D. Moustakas, N. G. Weimann, and L. F. Eastman, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 821 (1998).
- [159] W. T. Read, *Philos. Mag.* **45**, 775 (1954).
- [160] B. Pödör, *Phys. Stat. Sol.* **16**, K167 (1966).
- [161] Y. Zhang and J. Singh, *J. Appl. Phys.* **85**, 587 (1999).
- [162] K. Seeger, *Semiconductor Physics / An Indroduction* (Springer, Berlin, 1997).
- [163] P. T. Landsberg, *Recombination in semiconductors* (Cambridge University Press, Cambridge, 1991).
- [164] T. Mattila and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **58**, 1367 (1998).



- [165] C. R. Elsass, I. P. Smorchkova, B. Heying, E. Haus, P. Fini, K. Maranowski, J. P. Ibbetson, S. Keller, P. M. Petroff, S. P. DenBaars, U. K. Mishra, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3528 (1999).
- [166] S. M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices*, 2nd ed. (Wiley, New York, 1981), p. 440.
- [167] X. Z. Dang, P. M. Asbeck, E. T. Yu, G. J. Sullivan, M. Y. Chen, B. T. McDermott, K. S. Boutros, and J. M. Redwing, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3890 (1999).
- [168] I. L. Krestnikov, W. V. Lundin, A. V. Sakharov, V. A. Semenov, A. S. Usikov, A. F. Tsatsul'nikov, Z. I. Alferov, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1192 (1999).
- [169] N. Nakada, M. Nakaji, H. Ishikawa, T. Egawa, M. Umeno, and T. Jimbo, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1804 (2000).
- [170] S. Nakamura, *Science* **281**, 956 (1998).
- [171] M. A. Khan, J. N. Kuznia, J. M. V. Hove, and D. T. Olson, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1449 (1991).
- [172] I. J. Fritz and T. J. Drummond, *Electron. Lett.* **31**, 68 (1995).
- [173] T. Shirasawa, N. Mochida, A. Inoue, T. Honda, T. Sakaguchi, F. Koyama, and K. Iga, *J. Cryst. Growth* **189**, 124 (1998).
- [174] T. Someya and Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3653 (1998).
- [175] Y. Koide, H. Itoh, M. R. H. Khan, K. Hiramatu, N. Sawaki, and I. Akasaki, *J. Appl. Phys.* **61**, 4540 (1987).
- [176] J. C. Phillips, *Bonds and Bands in Semiconductors* (Academic Press, New York, 1973).
- [177] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors* (Springer Verlag, Berlin, 1996).
- [178] H. A. Macleod, *Thin Film Optical Filters*, 2 ed. (McGraw-Hill, New York, 1989).
- [179] M. Ohlidal, M. Uncovsky, I. Ohlidal, and D. Franta, *J. Mod. Optics* **46**, 279 (1999).
- [180] S. H. Wang, C. Quan, C. J. Tay, and H. M. Shang, *Opt. Eng.* **39**, 1597 (2000).
- [181] Z. L. Liao, R. L. Aggarwal, P. A. Maki, R. J. Molnar, J. N. Walpole, R. C. Williamson, and I. Melngailis, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1665 (1996).
- [182] H. M. Ng, C. Gmachl, S. N. G. Chu, and A. Y. Cho, in *27<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors* (Technical Digest, Monterey, 2–5 October 1999).
- [183] I. Ho and G. B. Stringfellow, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2701 (1996).
- [184] H. Tews, R. Averbeck, A. Graber, and H. Riechert, *Electron. Lett.* **32**, 2004 (1996).

- [185] S. Yoshida, J. Appl. Phys. **81**, 7966 (1997).
- [186] R. Singh, D. Doppalapudi, T. D. Moustakas, and L. T. Romano, Appl. Phys. Lett. **70**, 1089 (1997).

# Danksagung

Besonders herzlich danken möchte ich ...

... Prof. K. H. Ploog, an dessen Institut diese Arbeit entstand, für das motivierende Arbeitsklima, die fachlichen Anregungen und moralische Unterstützung während der letzten drei Jahre.

... Prof. W. T. Masselink und Prof. J. H. Wolter für ihre Bereitschaft, die vorliegende Arbeit zu begutachten.

... Dr. Oliver Brandt, der die GaN-Projektgruppe durch seine Kompetenz, Kreativität und Geduld auf unvergleichliche Weise führte und so entscheidend zum Gelingen dieser Arbeit beitrug.

... Dr. L. Däweritz, der es als Abteilungsleiter stets verstand, mir ein entspanntes wissenschaftliches Arbeiten zu ermöglichen und durch seine konstruktive Kritik zu bereichern.

... Patrick Waltereit für die enge fachliche Zusammenarbeit bei der GaN-Epitaxie und Probencharakterisierung. Seine Zielstrebigkeit, sein Humor und seine Vorliebe für irische Musik vervollständigten unsere GaN-Projektgruppe.

... Hans-Peter Schönherr für seinen unermüdlichen Einsatz und sein experimentelles Können im gesamten Umfeld der Molekularstrahlepitaxie und der UHV-Technik.

... Dr. Achim Trampert für die zeitaufwendige TEM-Aufnahmen und die zahllosen Diskussionen mit einem Laien.

... Hartmut von Kiedrowski für das thermochemische Wasserstoffätzen und die Präparation der vielen SiC-Substrate.

... Martin Reiche für die zahllosen hochauflösenden Röntgen-Messungen. Unter seiner Anleitung habe ich gelernt, unter Reinraumbedingungen sauber und präzise zu arbeiten.

... Michael Hörike für seine tatkräftige Unterstützung und Ratschläge bei allen UHV- und Anlagenproblemen.

... Peter Schützendübe, I. Schuster und D. Spaniol für die technische Unterstützung und die Hilfe im Chemie-Labor.

... Dr. Manfred Ramsteiner, Dr. Holger T. Grahn und Dr. Lutz Schrottke für die Hilfe bei dem Aufbau und der Durchführung von spektroskopischen Messungen.

... Dr. R. Hey für seine Hilfe bei komplexen Fragen der Epitaxie und Spektroskopie.

... Dr. Matthias Wassermeier, der mir zuerst die Faszination und die Herausforderung der Molekularstrahlepitaxie aufzeigte.

... Dr. H. Kostial, Dr. K.-J. Friedland und Dr. P. Krispin für die Durchführung und Interpretation der CV-, Hall-, SdH- und DLTS-Messungen.

... Dr. U. Jahn und I. Poppe für die zahlreichen SEM- und CL-Messungen.

... Oliver Mayrock für die Zusammenarbeit bei der Simulation der elektrischer Felder in Nitriden, die letztlich einen wichtigen Beitrag zum Verständnis der Abschirmung in dünnen, hochdotierten Schichten lieferten.

... Gerd Behme für die vielen AFM-Aufnahmen.

... Daniel Papoport für die Diskussionen und Anregungen bei der Interpretation der  $(2 \times 2)$ -Rekonstruktion von GaN.

... der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die mir eine wichtige Konferenzreise in die USA ermöglichte.

... dem Deutschen Akademischen Auslandsdienst, der mich bei einem projektbezogenen Aufenthalt an der Chalmers University of Technology in Göteborg (Schweden) finanziell unterstützte.

... meinen Eltern und Freunden für ihr Verständnis und die moralische Unterstützung.

# Lebenslauf

Andreas Thamm, geb. am 1. Mai 1973 in Berlin

1979 – 1989	Realschule in Berlin
1989 – 1991	Gymnasium in Berlin
09/1991 – 07/1993	Grundstudium der Physik an der Technischen Universität in Berlin
08/1993 – 07/1994	ERASMUS-Stipendiat an der University of Manchester, Institute of Science and Technology (UMIST), Großbritannien
07/1994	Bachelor of Science (physics)
10/1994 – 02/1996	Hauptstudium an der Technischen Universität in Berlin
04/1996 – 03/1997	Anfertigung der Diplomarbeit am Max-Born-Institut für nicht-lineare Optik und Kurzzeitspektroskopie (Berlin) in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. E. E. B. Campbell mit dem Thema <i>Herstellung und Charakterisierung von Kohlenstoffclustern</i>
07/1997	Physik-Diplom
09/1997 – 10/2000	Anfertigung der vorliegenden Dissertation am Paul-Drude-Institut für Festkörperelektronik in der Arbeitsgruppe von Dr. O. Brandt, Betreuung: Prof. Dr. K. H. Ploog

## Selbständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Dissertation *Reaktive Molekularstrahlepitaxie und Charakterisierung von GaN/(Al,Ga)N-Heterostrukturen auf SiC(0001)* selbständig und ohne unerlaubte Hilfe angefertigt zu haben.

Ich habe mich anderwärts nicht um einen Doktorgrad beworben und besitze einen entsprechenden Doktorgrad nicht.

Ich erkläre die Kenntnisnahme der dem Verfahren zugrundeliegenden Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I der Humboldt-Universität zu Berlin.

Andreas Thamm

Berlin, den 13. März 2001